

---

# Écoulement gaz – liquide en $\mu$ -lit fixe

---

## 2.1 Objectif du chapitre

Au chapitre 1, nous avons conclu à un besoin de révision des cartes d'écoulement G/L en présence de fines particules, de manière à concilier les observations sur l'absence d'effet de la gravité sur l'écoulement (ascendant ou descendant) avec les études publiées dans le domaine du génie chimique. En effet ces dernières prévoient un écoulement à bulle en écoulement ascendant et un écoulement ruisselant en écoulement descendant et donc un effet important de la gravité sur les transferts de matière et la distribution des fluides. L'objectif de ce chapitre est de décrire les écoulements G/L en présence de fines particules et de préciser les conséquences de ces écoulements en réacteurs de test catalytique.

Nous allons aborder le problème par une étude bibliographique sur les écoulements dans les milieux poreux présents en réacteurs micro-structurés et en micro-lit fixe (lit fixe rempli de poudre micro-métrique). Ensuite, grâce à quelques observations expérimentales, nous serons en mesure de proposer de nouvelles cartes d'écoulement. Pour terminer ce chapitre, nous examinerons les conséquences sur la modélisation des aspects réactionnels et proposerons des critères de conception pour les lits fixes en présence de particules fines.

## 2.2 Bibliographie sur les écoulements gaz-liquide dans des réacteurs avec structures micro-métriques

### 2.2.1 Écoulement en milieux poreux : écoulement capillaire

Les écoulements de fluides dans les milieux poreux ont été abondamment étudiés pour améliorer les taux de récupération d'huile dans les roches sédimentaires ou comprendre les écoulements dans les aquifères (approvisionnement en eau des villes ou gestion des pollutions des nappes phréatiques).

Le déplacement d'une phase mouillante par une phase non mouillante, par exemple déplacement d'huile ou d'eau par du gaz, est appelé drainage. Inversement, le déplacement d'une phase non mouillante par une phase mouillante, par exemple le déplacement de gaz par de l'huile est appelée imbibition. Les vitesses caractéristiques des écoulements sont de l'ordre de quelques  $\mu\text{m/s}$  ( $\text{Re} \ll 1$ ).

Lenormand [65] a proposé en 1988 sur la base de simulations et de résultats expérimentaux une carte d'écoulement en milieux poreux dans le cas du drainage : la phase non mouillante pousse la phase mouillante (ex : le gaz pousse le liquide). Cette publication a été citée au moins 565 fois depuis et est la référence du domaine. Cette carte (Figure 17) présente trois types d'écoulements :

- écoulement stable ("stable displacement") : une phase pousse l'autre avec une interface plane et stable.
- digitation visqueuse ("viscous fingering") : quand la phase "poussante" est moins visqueuse, elle remplace la phase plus visqueuse sous forme de doigts étroits présentant un aspect fractal .
- digitation capillaire ("capillary fingering") : la phase "poussante" remplace la phase précédente en formant des doigts assez larges et potentiellement interconnectés.

Dans la carte de Lenormand, l'axe des ordonnées est le nombre capillaire qui compare les forces visqueuses aux forces de capillarité, dans ce cas la comparaison est calculée pour le fluide "poussant" (la nouvelle phase, indice 2) :

$$Ca = \frac{\mu u}{\sigma}$$

$\mu$  (=  $\mu_2$ ): viscosité de la nouvelle phase, Pa.s

$u$  : vitesse locale du de la nouvelle phase ( $u_{xs} / \epsilon$ ), m/s

$\sigma$  : tension de surface, N/m

Le deuxième axe est le rapport de viscosité entre les deux fluides (viscosité nouvelle phase 2 / viscosité ancienne phase 1).

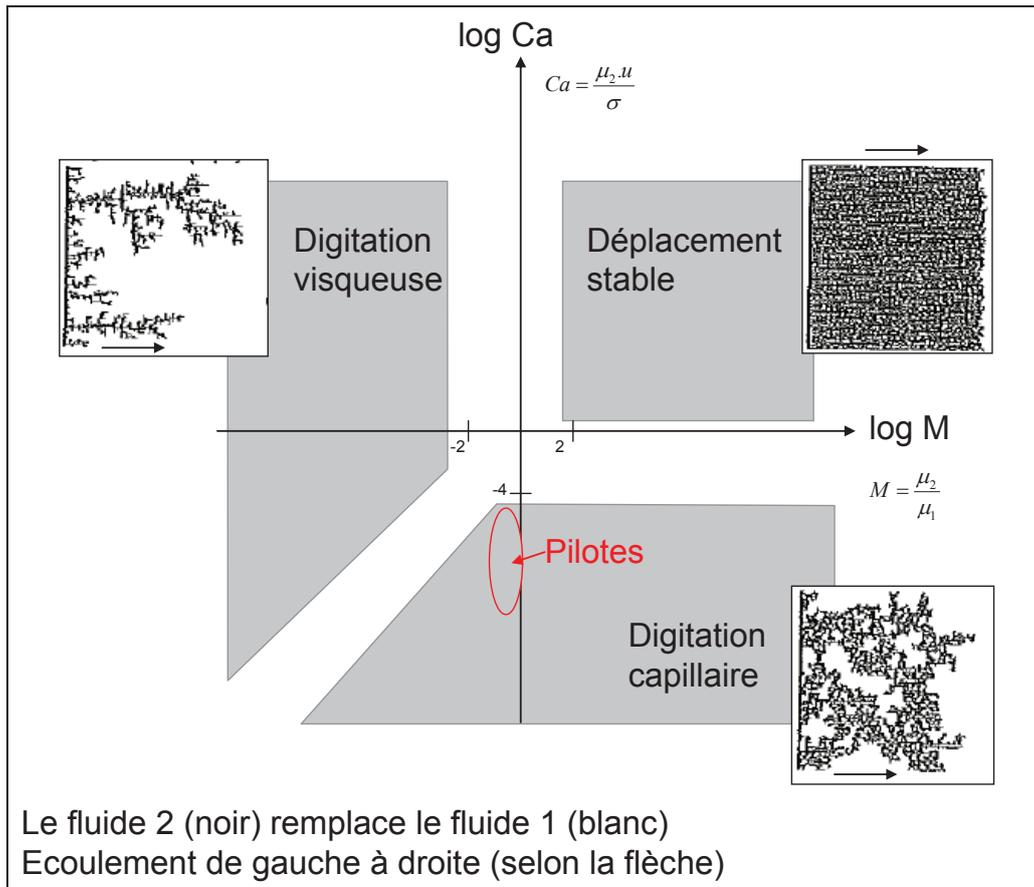


Figure 17 : Carte d'écoulement en milieu poreux (drainage) d'après [[65]]. Localisation des conditions en réacteurs pilotes de raffinage

Les transitions entre ces régimes peuvent s'expliquer assez simplement d'un point de vue énergétique. En l'absence d'effet capillaire, déplacer la phase la plus visqueuse sur toute la largeur de la zone d'écoulement nécessite plus d'énergie que de la "percer" : c'est la digitation visqueuse qui a lieu quand la phase nouvelle est beaucoup moins visqueuse ( $\mu_2/\mu_1 \ll 1$ ). Inversement, si la phase nouvelle est plus visqueuse ( $\mu_2/\mu_1 \gg 1$ ), et toujours en l'absence d'effet de capillarité, la nouvelle phase poussera la phase la moins visqueuse sur toute la largeur avec un front de déplacement "stable". Le critère de transition entre l'écoulement stable et la digitation visqueuse est le ratio des viscosités.

Les effets de capillarité interviennent lorsque la perte de pression au passage d'un col<sup>21</sup> ( $\Delta P \propto \frac{2\sigma}{r}$ ) est plus forte que la perte de pression induite par le cisaillement des phases déplacées ( $\Delta P \propto \max(\frac{\mu_1 \cdot u}{r}, \frac{\mu_2 \cdot u}{r})$ ) avec  $r$  rayon du col. Dans ce cas, l'interface entre la nouvelle phase et l'ancienne phase progresse en passant par les passages les plus gros où la

<sup>21</sup> Lieu le plus étroit d'un passage entre 2 pores.

perte de pression capillaire est la plus faible. C'est l'écoulement de type "digitation capillaire". Quand la viscosité de la nouvelle phase augmente, le cisaillement ralentit la progression de l'interface qui peut alors soit évoluer vers le type "front stable" si la viscosité de la nouvelle phase est plus élevée que l'ancienne, soit vers le type digitation visqueuse si la viscosité de la nouvelle phase est plus faible que l'ancienne. Le ratio des deux pertes de pression, le nombre capillaire, est un bon descripteur de transition entre les régimes à condition de considérer la phase la plus visqueuse :

- entre digitation capillaire et front stable (nouvelle phase plus visqueuse), la transition dépend du nombre capillaire sur la nouvelle phase :  $Ca = \frac{\mu_2 \cdot u}{\sigma}$ . cette transition correspond à une droite horizontale dans la carte de Lenormand.
- entre digitation capillaire et visqueuse (nouvelle phase moins visqueuse), la transition dépend du nombre capillaire sur l'ancienne phase :  $Ca = \frac{\mu_1 \cdot u}{\sigma}$ . Cette transition se traduit par une droite à 45° dans la carte de Lenormand.

Lenormand a proposé les frontières entre les 3 régions suite à des simulations et des expérimentations sur différents couples de fluide. Les simulations sont basées sur un modèle d'écoulement diphasique dans des réseaux de pores structurés avec des tailles aléatoires de passages entre pores. Le modèle suppose que la nouvelle phase envahit totalement un pore jusqu'aux cols entre pores et ne dépasse un col que si l'écart de pression entre les pores séparées par ce col est supérieur à la pression capillaire. La pression dans chaque pore dépend de la vitesse de circulation des phases.

Dans cette carte, les vitesses sont suffisamment faibles pour pouvoir négliger les effets d'inertie (termes en  $u^2$ ). Les effets de la gravité, plus exactement de la force d'Archimède, ont été également été négligés car le nombre Bond,  $B = \frac{\Delta\rho \cdot g \cdot r^2}{\sigma}$  est petit devant 1 [66]. Dans les cas où la gravité a un effet, des adaptations de la carte de Lenormand ont été proposées, dont par exemple la carte proposée par Prat [67] dans un cas de séchage de milieu poreux (Figure 18).

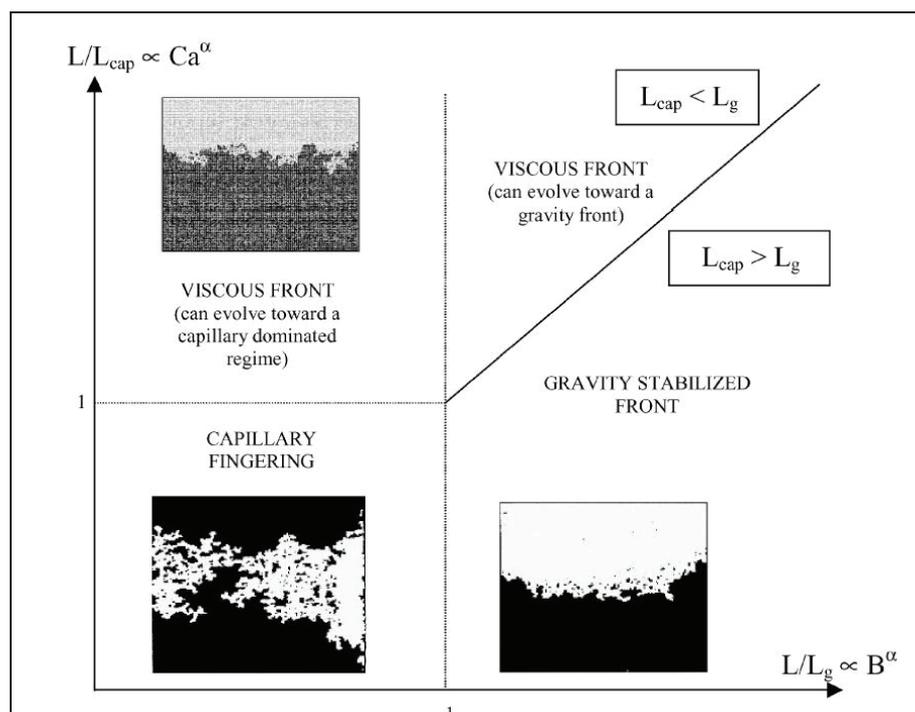


Figure 18 : Carte de forme des interfaces lors d'un séchage en milieu poreux [67].

En drainage, les digitations capillaire et visqueuse peuvent se rencontrer dans des milieux poreux avec des tailles de passage aussi grandes que  $500 \mu\text{m}$ , dimensions de passage que l'on retrouve dans des empilements de particules de  $3 \text{ mm}$  de diamètre<sup>22</sup>. En présence de particules fines de  $60 \mu\text{m}$ , la taille des passages est de l'ordre de  $10 \mu\text{m}$ . La carte d'écoulement de Lenormand en drainage de milieu poreux est donc potentiellement intéressante pour décrire les écoulements de gaz dans un réacteur lit fixe initialement rempli de liquide.

Les valeurs caractéristiques des fluides rencontrés en pilote sont présentés dans le Tableau 5 pour des réactions de type hydrogénation sélective, hydro désulfuration, hydrotraitement et hydrocracking.

<sup>22</sup> Le diamètre du passage entre 3 billes en contact vaut  $\frac{2}{\sqrt{3}} - 1 dp \sim 0.15 dp \sim dp/6$  avec  $d_p$  diamètre de bille.

**Tableau 14 : Valeurs caractéristiques en pilote de raffinage**

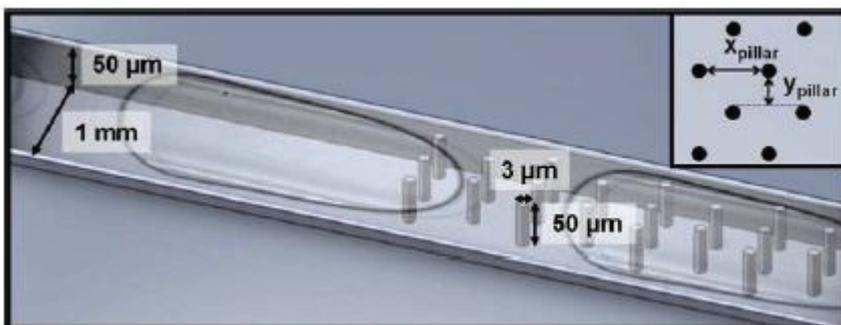
	Viscosité (Pa.s)	Densité (kg/m <sup>3</sup> )	Vitesse superficielle (mm/s)	Tension de surface (N/m)
Liquide	1 à 4 .10 <sup>-4</sup>	700-900	0.01 à 10	5 à 15 .10 <sup>-3</sup>
Gaz	1 à 4 .10 <sup>-5</sup>	10-100	0.07 à 10	

Le ratio de viscosités  $M$  entre les phases ( $M = \mu_2/\mu_1$ ) est de l'ordre de 0.1 et dans les pilotes le nombre capillaire sur la nouvelle phase de l'ordre de  $10^{-5}$  à  $10^{-7}$ . Dans la carte de Lenormand, cette région correspond à la digitation capillaire (Figure 17). Autrement dit, d'après la littérature des milieux poreux, et donc en l'absence d'effet gravitaire, les effets capillaires vont influencer l'écoulement. Le gaz va progresser dans la porosité du lit en passant par les passages les plus gros où la perte de pression capillaire est la plus faible.

Nous n'avons pas trouvé de carte d'écoulements dans le cas de l'imbibition.

### 2.2.2 Écoulements en $\mu$ -lit structuré

Les techniques de photolithographie de l'industrie du semi-conducteur permettent la préparation de géométries structurées à l'échelle de la centaine de micromètres ( $\mu\text{m}$ ), par exemple des canaux avec des piliers de forme variées (Figure 19). Ces géométries périodiques et à haute symétrie permettent d'étudier les écoulements dans des conditions maîtrisées et propice à la modélisation.



**Figure 19 : Exemple de géométrie de micro-lit fixe structuré, d'après De Loos [DeLoos2010].**

Wilhite [80] a étudié les écoulements dans un lit fixe structuré constitué de piliers d'environ 50  $\mu\text{m}$  régulièrement espacés (20 / 86  $\mu\text{m}$  selon la direction radiale ou axiale). Les écoulements étaient de 2 types :

- 1) pour des débits gaz faible : écoulement annulaire avec le liquide sur les bords et le gaz au centre du lit et une interface gaz-liquide statique allant de pilier en pilier
- 2) pour des débits gaz plus élevés, l'interface gaz - liquide se déplace latéralement et continuellement en allant de pilier en pilier (écoulement chaotique "churn flow"). Il semble que la phase gaz et la phase liquide soient continues mais séparées.

Les transitions entre régime ne correspondent pas aux transitions dans des cartes d'écoulement en tube ou en lit fixe arrosé.

Dans un dispositif où le gaz est injecté sur les côtés et liquide dans l'axe du canal (Figure 20), McGovern a obtenu des résultats légèrement différents [68]:

- à faible débit gaz, l'écoulement est qualifié de "dominé par le liquide" avec le liquide en phase continue qui entraîne des bulles de taille caractéristique correspondant à plusieurs espacement entre piliers ;
- à fort débit gaz, l'écoulement est qualifié de type "dominé par le gaz" avec des interfaces liquide - gaz statiques et des grandes bulles de gaz qui contournent le liquide ;
- à débit gaz intermédiaire, les interfaces gaz-liquide sont mobiles avec une alternance périodique de liquide et de gaz à un endroit donné. Dans ce régime, des gouttes stagnantes pouvaient persister au milieu de zones de gaz.

Les transitions entre les régimes sont décalées vers les débits gaz plus élevés si le débit liquide augmente.

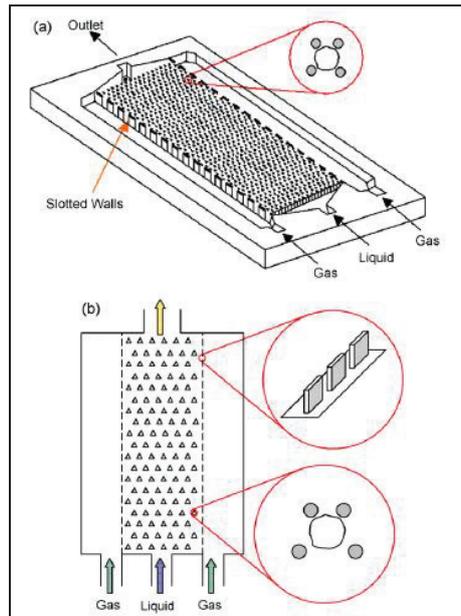


Figure 20 : Schéma du dispositif avec injection de gaz par les côtés, d'après [68].

Van Herk [31] a étudié l'effet d'un changement de l'espace entre pilier sur les écoulements gaz-liquide. Dans un réseau où l'espacement entre piliers est constant ( $150\ \mu\text{m}$ ), le gaz progresse de manière aléatoire avec un taux de présence moyen temporel assez uniforme en tout endroit du réseau (Figure 21 - droite). Par contre en présence d'une bande sectionnelle de piliers plus resserrés que le reste du réseau, le gaz circule uniquement dans les passages les plus larges et se répartit de manière très inhomogène (Figure 22 – gauche).

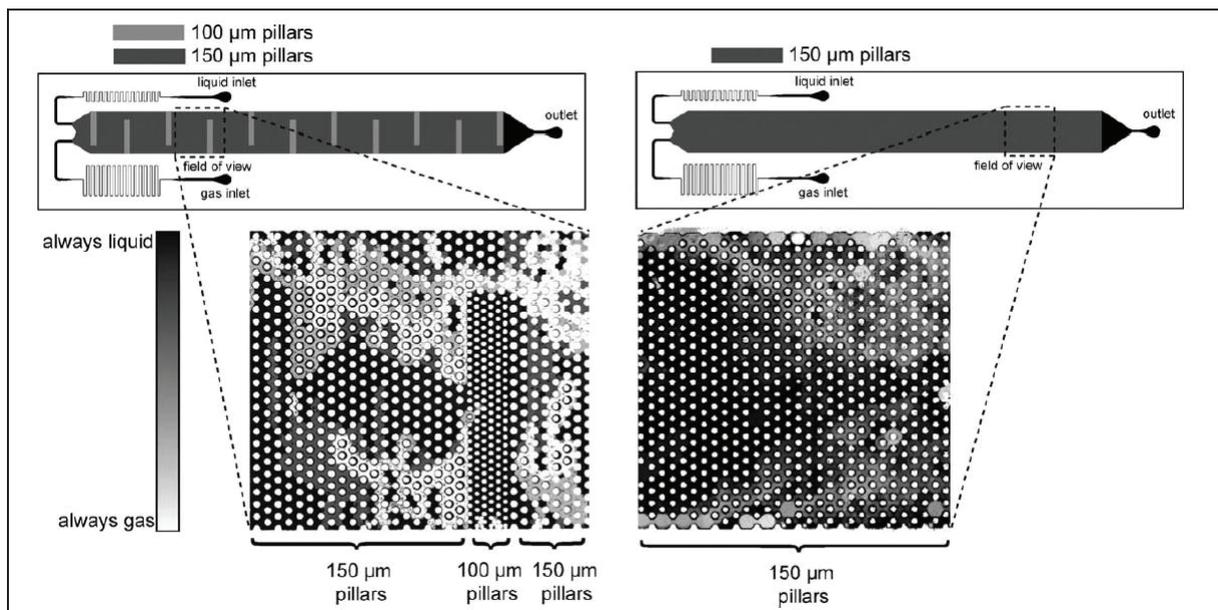
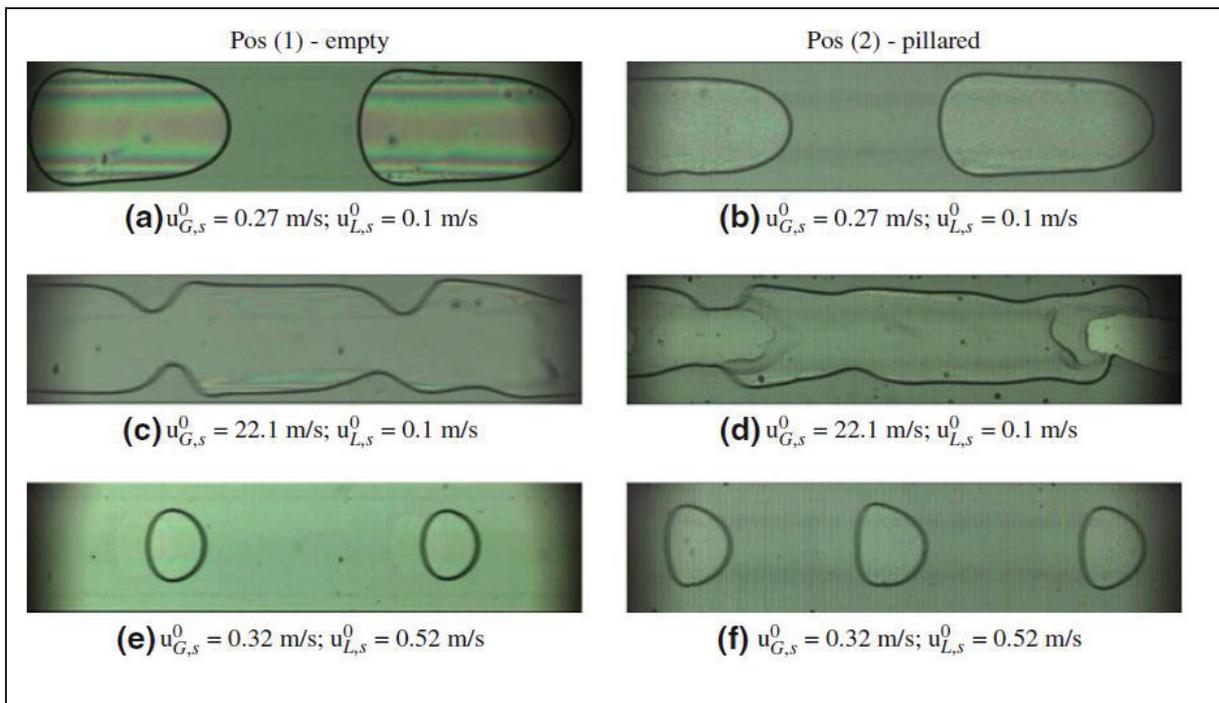
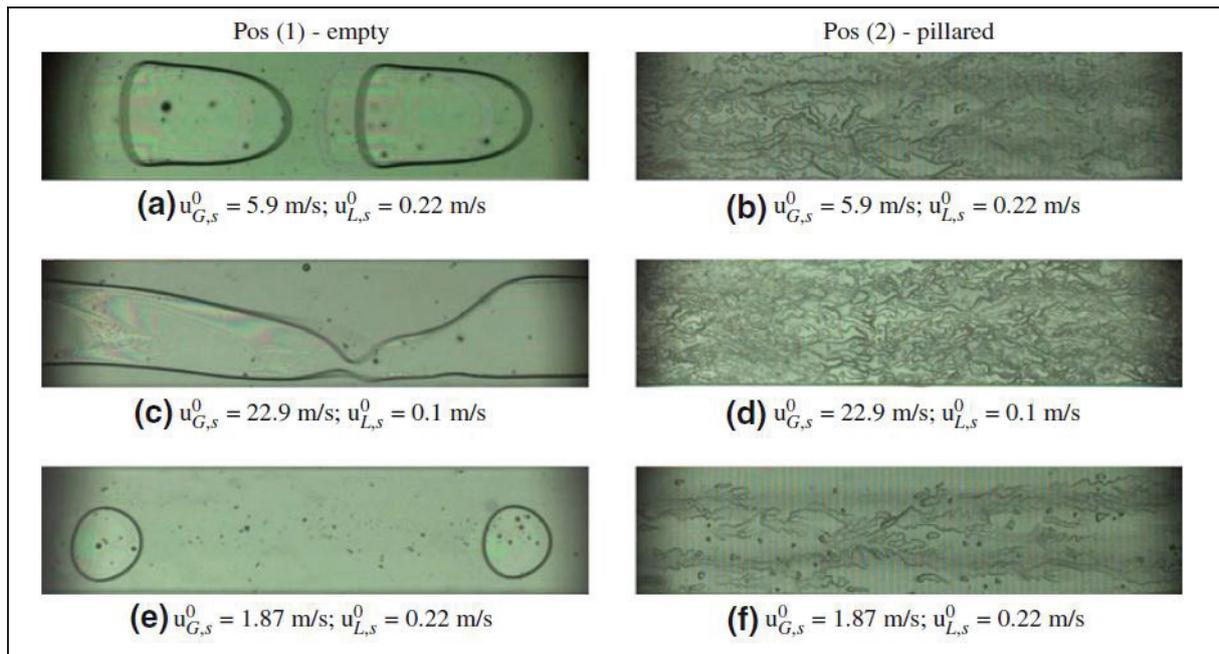


Figure 21 : Écoulement gaz-liquide dans un réseau de tube avec (gauche) ou sans (droite) zone de piliers plus resserrés. D'après [31].

DeLoos [69] a étudié les régimes d'écoulement dans un réseau de piliers en silicium de  $3 \mu\text{m}$  avec différents espacements ( $7, 12$  et  $17 \mu\text{m}$ ) pour un système eau – azote dans un canal de  $1 \text{ mm} \times 50 \mu\text{m} \times 6.6 \text{ mm}$  (largeur x profondeur x longueur). L'expérimentation permet d'observer l'écoulement en canal vide puis en canal rempli du réseau de piliers. Les régimes d'écoulement dans la partie vide du canal correspondent à ceux prédits dans la littérature des écoulements gaz-liquide dans un canal : alternance de bouchons liquide et bulles (écoulement de Taylor) qui évolue vers un écoulement annulaire plus ou moins stable à fort débit gaz. Les écoulements dans le réseau de piliers espacés de  $17 \mu\text{m}$  étaient identiques à ceux du canal vide (Figure 22). Par contre, dans le réseau avec un espacement de  $7 \mu\text{m}$ , le régime d'écoulement changeait drastiquement et devenait indépendant des conditions de débits gaz et liquide (Figure 23). On observe sur les photographies de cet écoulement des bulles et portions liquides de formes "branchées" (dendritiques) très caractéristiques des écoulements diphasiques en milieux poreux. Comme l'écoulement en entrée est instationnaire, il est difficile de conclure si le caractère instationnaire de l'écoulement dans le lit de piliers est intrinsèque à l'écoulement ou aux conditions d'entrée. Des modèles de perte de pression ne tenant pas compte de la capillarité sont proposés sans permettre de décrire correctement les observations.



**Figure 22 : Photographie des écoulements d'après [69] figure 5. Gauche : écoulement dans le canal vide. Droite écoulement dans le canal avec piliers espacés de  $17 \mu\text{m}$**



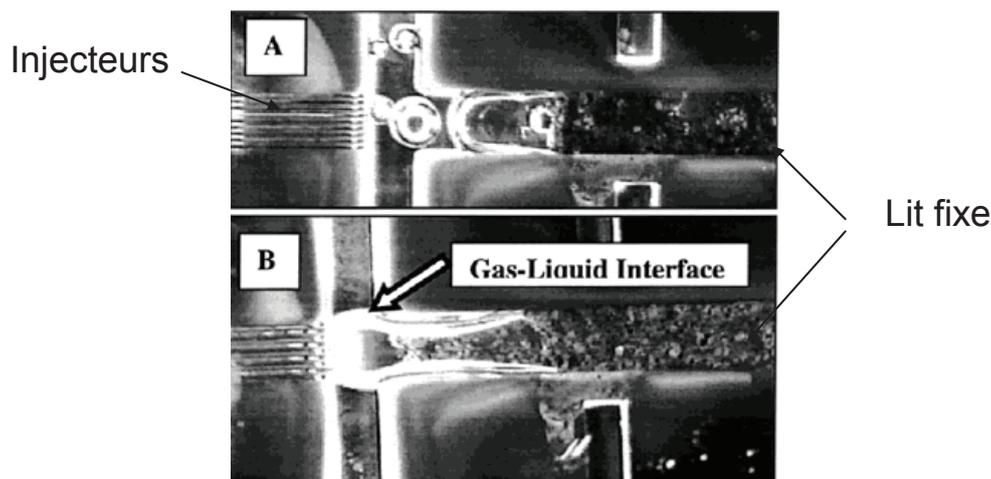
**Figure 23 :** Photographie des écoulements d'après [69] figure 5. Gauche : écoulement dans le canal vide. Droite écoulement dans le canal avec piliers espacés de  $7 \mu\text{m}$

Les écoulements en lit micro-structurés de type pilier ont mis en évidence des régimes hydrodynamiques dépendant de la taille des passages, avec une séparation spatiale des phases assez marquée (qui permet de minimiser l'aire d'interface gaz-liquide) et parfois des écoulements de type dendritiques (espace entre pilier très restreint). Le gaz circule préférentiellement dans les passages les plus importants. Les régimes sont fortement dynamiques mais l'aspect instationnaire peut être induit par des conditions d'injection pulsées.

### 2.2.3 Écoulements en lit de poudre micrométrique

Parallèlement aux travaux en lits micro-structurés, des équipes ont étudié les écoulements dans des lits fixes remplis de poudre micrométrique, que nous appellerons  $\mu$ -lit fixes.

Losey [70], de l'équipe de Jensen au MIT, a caractérisé et opéré un  $\mu$  lit fixe plat (largeur  $625 \mu\text{m}$ , hauteur  $300 \mu\text{m}$  et longueur non précisée  $>$  dizaines de mm) formé de particules de  $50\text{-}75 \mu\text{m}$ . Le gaz et le liquide sont introduits dans le canal par un réseau de canaux parallèles de manière à assurer un bon mélange entre phase (Figure 24). Les fluides parcourent quelques millimètres de canal non rempli de particules avant d'atteindre le lit fixe.



*Figure 24 : Photographie de l'entrée du dispositif utilisé par Losey [70].  
A : injection gaz - liquide pulsée ; B : injection gaz - liquide « stable »*

Les auteurs ont observé deux types d'écoulement dans le lit fixe :

- un régime pulsé avec assèchement périodique du lit à fort débit gaz et liquide (Figure 24-A) ;
- un régime "stable" à faible débit liquide et gaz (Figure 24-B). La nature de l'écoulement stable n'est pas précisée.

Il apparaît que l'écoulement en entrée de lit fixe dépend fortement du débit gaz : le gaz forme des bulles à faible débit (Figure 24-A) et forme une interface quand le débit gaz augmente et que les bulles coalescent (Figure 24-B). Dans ce dernier cas, dans la zone avant le lit fixe, le liquide s'écoule sur le bord et le gaz au centre. Il est probable que cela a une incidence sur la rétention des phases dans le lit (plus de gaz au centre) mais ce point n'est pas discuté dans l'article. Les coefficients de transfert gaz-liquide ont été estimés à des valeurs très élevées, entre 5 et 15  $s^{-1}$ , par une approche de film globale (sans modèle de réacteur) et en soustrayant la cinétique intrinsèque (estimée à 16  $s^{-1}$ ) au flux de réaction apparent.

Van Herk [30] a mesuré les distributions de temps de séjour pour des écoulements gaz-liquide (éthanol – azote) descendants dans des tubes de diamètre 2 mm remplis avec des particules sphériques de 100  $\mu m$  de diamètre sur une hauteur de 500 mm. Van Herk constate qu'en écoulement liquide et à faible débit, le temps de séjour moyen est systématiquement plus faible qu'attendu, ce qui indique des zones du réacteur où le liquide ne circule pas (zone stagnante ou bulles de gaz résiduelles). Selon les débits gaz et liquide, les nombres de Péclet (basés sur la longueur de réacteur) sont compris entre 150 et 1000 ; les nombres de Bodenstein correspondants sont de l'ordre de 0.1 (entre 0.04 à 0.3). La dispersion axiale dépend peu du débit liquide et ne dépend pas du débit gaz pour des vitesses gaz supérieures à 2 cm/s.

Marques [71] a continué les travaux de Van Herk en mesurant des distributions de temps de séjour (DTS) du liquide dans les mêmes conditions mais en variant la nature du liquide (tétradécane, méthyl-stéarate, cumène, hexane et isopentane). Marques note qu'après arrêt de l'alimentation, aucun liquide ne sort du réacteur sous l'effet de la gravité : la rétention liquide statique est (supérieure ou) égale à la rétention dynamique. Le taux de liquide dans le réacteur dépend très peu du débit gaz et est très élevé (65 à 85 % de la porosité) et supérieur à certaines mesures réalisées en écoulement ascendant (à bulles). Le nombre de Bodenstein est de 0.4 pour un écoulement purement liquide et dans la gamme 0.1-0.25 pour les écoulements gaz-liquide. Il dépend peu du débit gaz. Pour expliquer la faible dépendance en fonction du débit gaz, les auteurs proposent une faible interaction entre les phases gaz et liquide, par exemple que les bouchons de gaz passent rapidement dans le réacteur sans pousser de liquide ce qui s'apparente à une séparation spatiale des phases ("channeling").

Iliuta [72] a étudié les modèles de perte de pression et de rétention qui décrivent le mieux les mesures réalisées avec un écoulement air-eau dans un lit fixe horizontal de particules sphériques de 55  $\mu\text{m}$ . Parmi les conclusions de l'étude, on peut retenir l'importance de la tension capillaire qui conduit à une "séparation" des phases ("channeling") : le gaz circule préférentiellement dans les régions à forte porosité (près de la paroi) et le liquide circule préférentiellement au centre. Ces conclusions rejoignent les observations en lit  $\mu$ -structuré.

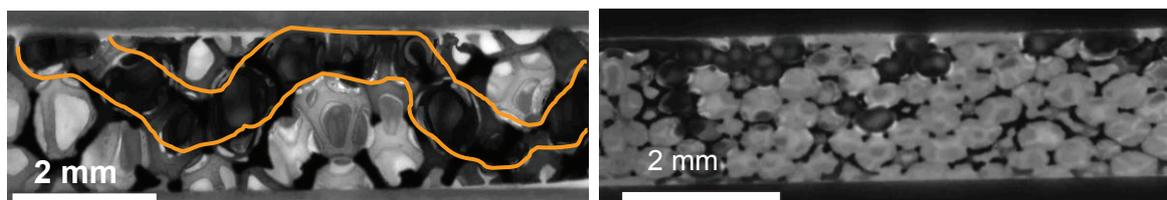
L'hydrodynamique dans les réacteurs lit fixes avec de la poudre semble relativement piston, avec une séparation ou une faible interaction des phases gaz et liquide. Les taux de rétention liquide dans le réacteur sont très élevés et indépendants du débit confirmant l'importance de la capillarité.

### 2.2.4 Écoulements en mousse

Les études sur les écoulements gaz-liquide en mousse ouverte apportent des données complémentaires avec des taux de vide plus élevés.

Stemmet a été un des premiers à étudier les écoulements gaz liquide dans les mousses initialement en contre-courant puis en co-courant ascendant [73]. Ces études ont été réalisées dans des mousses dont la taille de pore (10 à 40 pores per inch, soit des pores de 0.6 à 2 mm) correspondrait à celles de lits fixes avec des particules de 3 à 10 mm. Il propose une transition entre le régime "à bulle" et le régime "pulsé" quand la vitesse superficielle de gaz dépasse 30 cm/s. Les résultats présentés (perte de pression, transfert de matière) correspondent à ceux attendus avec des lits fixes remplis de grosses particules.

Tourvieille [74] a étudié les écoulements dans des mousses horizontales insérées dans un canal de 2 mm environ. Il a constaté que dans une mousse avec une taille de col (fenêtre) de 400  $\mu\text{m}$ , le gaz circule sous forme de bulles allongées, qui, à fort débit, forment un cylindre méandreux continu (Figure 25 - gauche). Dans des mousses avec des tailles de col deux fois plus petites (175  $\mu\text{m}$ ), le gaz occupe un volume plus tortueux et avec des ramifications (Figure 25 - droite), caractéristiques typiques de l'écoulement capillaire.



*Figure 25 : Photographie d'écoulement dans des canaux remplis de mousse. D'après Tourvieille [74].*

*Gauche : Bulle de gaz dans une mousse avec une taille de col de 400  $\mu\text{m}$ .*

*Droite : idem dans une mousse avec une taille de col de 175  $\mu\text{m}$ . Le gaz correspond à la zone sombre (délimitées par les traits de couleur à gauche).*

La littérature des écoulements gaz-liquide dans des mousses démontre à nouveau que les mousses "larges" (à grandes pores) se comportent comme un lit fixe, alors que les mousses "fines" (à petites pores) présentent des caractéristiques typiques des écoulements capillaires. Tout comme dans les lits  $\mu$  structurés et  $\mu$  lit fixes, il semble exister une échelle géométrique en dessous de laquelle les effets capillaires prennent le dessus et les écoulements deviennent ceux des milieux poreux.

### **2.2.5 Écoulements en lits fixe de particules millimétriques avec remplissage de porosité**

Un dernier type de résultats concerne les écoulements dans les lits fixes de particules millimétriques, généralement du catalyseur, dont la porosité est remplie de particules micrométriques, généralement inerte. Dans ce cas, il y a co-existence de deux échelles de longueur : celle des particules millimétriques et celle des particules  $\mu$ -métriques. Les particules millimétriques agissent comme parois pour des écoulements dans les  $\mu$  particules. Ce type de chargement est celui pratiqué couramment dans les tests de catalyseur mis en forme [18].

Thanos [75] a mesuré les distributions de temps de séjour du liquide dans des réacteurs chargés avec des particules de type trilobes ( $d = 1.5\text{mm}$ ,  $l = 2.7\text{ mm}$ ) diluées dans de la poudre fine (250  $\mu\text{m}$ ) à différentes températures avec des écoulements gaz ( $\text{N}_2$ ) – liquide

(hydrocarbure de type diesel) ascendant. Le taux de rétention liquide est très important (85 à 95 % de la porosité). Le taux de rétention liquide augmente avec la température. Inversement, le nombre de Péclet du réacteur diminue rapidement avec la température, ce qui correspond à des valeurs du nombre de Bodenstein<sup>23</sup> chutant de 1 à 0.1, et semble corrélé linéairement avec la viscosité cinématique de la charge. Nous proposons pour expliquer ces résultats, qu'avec l'augmentation de la température et la baisse de viscosité, le liquide soit plus mouillant, plus précisément que des films moins épais deviennent mobiles (par diminution des cisaillements). Dès lors, le liquide peut occuper des espaces très resserrés par mouillage mais ces volumes sont trop contraints pour que le liquide y circule : il y a augmentation des zones stagnantes et dégradation de la dispersion axiale.

Bellos [39] a constaté visuellement que dans des lits fixe avec ou sans poudre fine entre les grains de catalyseur, en écoulement ascendant, le gaz sort des lits sous forme de train de bulles en quelques endroits seulement. L'article conclut que les bulles suivent des chemins assez définis dans le lit et que l'interaction gaz-liquide est assez faible dans les deux cas. Nous retrouvons les caractéristiques apparentes des écoulements capillaires.

### **2.2.6 Synthèse de la bibliographie sur les écoulements en présence de micro particules.**

La littérature des milieux poreux, qui néglige les effets gravitaires, propose des cartes de remplacement d'une phase par une autre. Les conditions en unité pilote correspondent sur la carte d'injection de gaz dans du liquide (drainage) à un écoulement capillaire. Les écoulements capillaires se caractérisent par une phase gaz occupant un réseau sinueux de pores avec des ramifications. Des écoulements de type capillaire sur le gaz ont été observés par DeLoos [69] dans un réseau de piliers espacés de 7  $\mu\text{m}$  et dans des mousses [74].

Les écoulements en lit  $\mu$  structurés de type pilier et en réacteur lit fixes avec de la poudre ont mis en évidence une séparation spatiale des phases assez marquée, l'importance des effets capillaires (taux de rétention liquide très élevée, passage des bulles de gaz préférentiellement dans les passages les plus gros, existence de ramification du réseau de gaz). Les études en lit fixe de particules millimétriques avec remplissage de porosité indiquent des tendances similaires et également que la physique des écoulements est contrôlée par les particules les plus petites. Ces études confirment qu'il existe une dimension des passages en dessous de laquelle, les processus physiques dominants diffèrent de ceux des écoulements lit fixe

---

<sup>23</sup> calculé sur la base des particules  $\mu$  métriques.

ruisselants classiques avec des particules ou pores millimétriques (taux de gaz important, film en surface des particules).

La littérature en lit fixe structuré ou poudre indique également que les conditions d'injection ont une grande importance : à ces échelles, le mélange gaz-liquide en entrée de lit se présente soit sous forme d'un écoulement de Taylor (alternance de bulles et de bouchon), soit de deux phases séparées et donc une distribution non homogène sur la section. Une injection de type écoulement de Taylor correspond pour le lit fixe à une alternance de drainage / inhibition, auquel cas la dynamique de mise en régime de l'écoulement va interagir avec celle de l'injection.

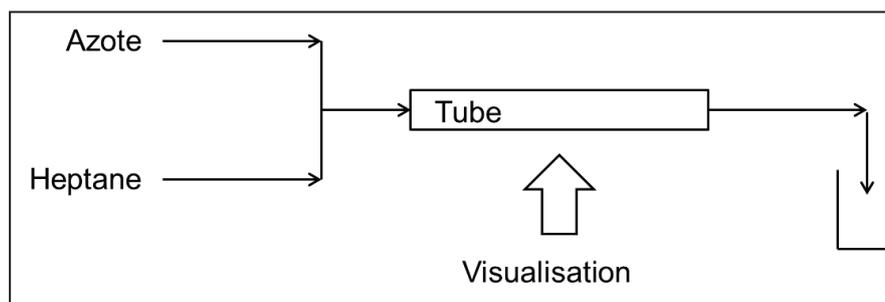
Avant de continuer la réflexion sur les cartographies d'écoulement, des expériences ont été menées pour observer le comportement de  $\mu$  lits fixes notamment en imbibition (injection de liquide dans un lit fixe sec), et approfondir l'effet des conditions d'injection dans le  $\mu$  lit fixe.

## 2.3 Quelques observations expérimentales

### 2.3.1 Observations d'écoulement en tube millimétrique

Les écoulements en  $\mu$  lit fixe ont été observés au moyen d'une expérimentation de visualisation très simple (Figure 26). Un tube de verre de 6 mm de diamètre a été rempli avec des extrudés (Trilobes, diamètre 1.6 mm) et des billes de verre Duran de 60  $\mu\text{m}$  (Figure 27-a). Le tube a été exposé alternativement à de l'heptane (liquide) et de l'azote sous forme d'écoulement de Taylor (alternance de bouchon de liquide et bulles de gaz) à pression proche de l'atmosphérique. Les débits n'étaient pas mesurés. La vitesse des bulles et des bouchons était de l'ordre de 1 cm/s. La longueur des bouchons et bulles étaient suffisantes pour que le lit ait changé "d'état" sur toute sa longueur avant l'arrivée de la bulle ou du bouchon suivant. Nous avons observé la surface externe du lit de billes fixe. L'indice de réfraction des billes de verre Duran est quasiment égal à celui de l'heptane de sorte que quand les billes sont mouillées, elles deviennent invisibles. Inversement, quand les billes sont sèches, elles apparaissent blanches.

Les expériences ont été répétées en changeant l'orientation du lit fixe (horizontal, vertical ascendant, vertical descendant) sans modification apparente des écoulements.



**Figure 26 : Schéma du dispositif d'observation des écoulements en tube en  $\mu$  lit fixe.  
Le tube peut être horizontal ou vertical avec écoulement ascendant ou descendant.  
La visualisation est réalisée au moyen d'un appareil photo numérique.**

Imbibition : Quand on injecte de l'heptane dans le lit préalablement drainé (sec) (Figure 27-b), l'heptane mouille totalement la poudre. Le liquide progresse selon un front de propagation continu. Ce front n'est ni plan, ni perpendiculaire à l'écoulement. La forme du front dépend de la position axiale dans le tube. La vitesse de progression est proportionnelle au débit liquide.

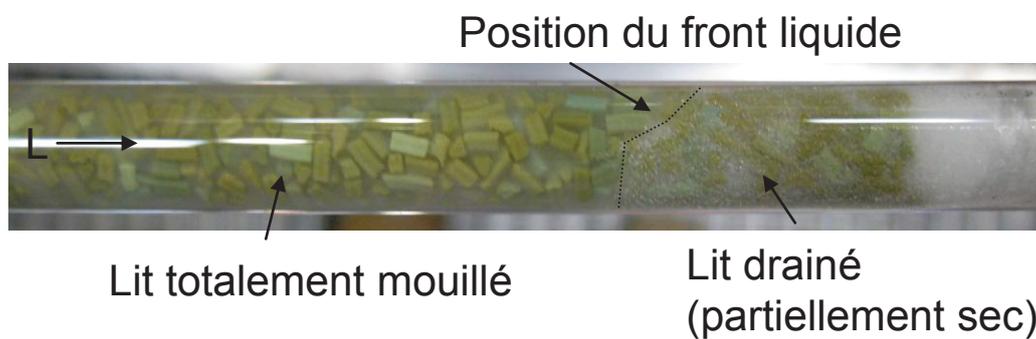
Drainage : Quand on injecte du gaz dans le lit initialement mouillé (Figure 27-c), le gaz progresse par "à-coup" et de manière branchée (digitation). A débit de gaz constant, à partir du moment où le gaz atteint la sortie, le nombre et la position des passages de gaz ne changent plus : la rétention gazeuse est stable. Une augmentation de débit de gaz conduit à une augmentation de la rétention gaz (Figure 27-d) allant jusqu'au séchage.

Ces observations confirment que le mécanisme de mouillage (imbibition) peut ne pas être stable (front non plan) avec un effet de la géométrie via la capillarité. Un écoulement capillaire du gaz dans le liquide est confirmé. Les conditions d'injection alternées (gaz/liquide) conduisent à des écoulements pulsés dans le lit fixe.

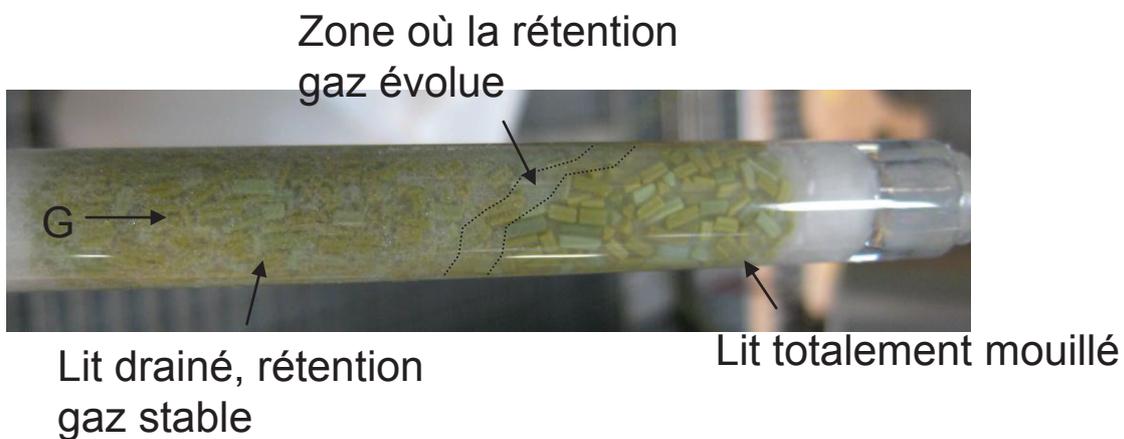
a) Tube sec avant exposition à l'écoulement



b) Liquide entrant à gauche et mouillant toutes les particules



c) Gaz entrant à gauche et envahissant l'espace poral mouillé



d) Après exposition à un fort débit gaz



**Figure 27 :** Tube rempli avec des extrudés (jaunes/verts) et des billes de verre Duran de  $60 \mu\text{m}$  et exposé à des écoulements alternés d'heptane et d'azote. Les particules de verre Duran sont "invisibles" quand elles sont mouillées par de l'heptane.

### 2.3.2 $\mu$ -tomographie

Dans une autre expérimentation, un empilement de billes de verre de 60  $\mu\text{m}$  chargées dans un tube de 6 mm de diamètre a été exposé à un mouillage total par l'heptane. Une alimentation par un débit modéré d'azote a ensuite conduit à un dé-mouillage partiel du lit. Le tube a alors été scellé de manière à empêcher l'évaporation de l'heptane.

Le tube a été observé par  $\mu$  tomographie<sup>24</sup> à rayon X à forte résolution spatiale (résolution  $\sim 6$   $\mu\text{m}$ ). Le principe de la tomographie consiste à mesurer l'atténuation d'un faisceau de rayon X au travers du réacteur pour différentes positions angulaires et à reconstruire le contenu du volume par un traitement mathématique. Le degré d'atténuation du signal est proportionnel à la masse atomique des éléments de sorte qu'il est possible de distinguer les phases dans le réacteur. Les billes de verres apparaissent en blanc, le liquide en gris et le gaz en noir (Figure 28). La technique donne accès à la répartition du liquide dans le lit fixe.

---

<sup>24</sup> Appareil modèle Nanotom (Phoenix X-Ray, germany). Conditions d'acquisition : 90 KV, 170 $\mu\text{A}$ . Détecteur Hamamatsu (110 mm x 110 mm, 2304 pixel x 2034 pixel). Acquisition de projections 2D en 360 pas de 1°. Résolution d'acquisition : 3  $\mu\text{m}$ . Résolution de reconstruction : 6 $\mu\text{m}$ .



*Figure 28 : billes de 60  $\mu\text{m}$  dans un tube de 6 mm. Noir = gaz, Gris = liquide, Clair = bille.*

La tomographie a été réalisée 2 mois environ après la préparation de l'échantillon sans modification apparente de l'aspect externe de l'échantillon. Marques [71] a constaté que dans des lits fixes de poudre de 100  $\mu\text{m}$ , la rétention n'évolue pas après arrêt de l'écoulement (pas d'écoulement en dehors du lit). Comme l'échantillon était scellé, nous pensons que l'évaporation a été négligeable. La répartition de phase observée sur la Figure 27. correspond probablement à la situation en écoulement (rétention et répartition dynamique).

Les billes sont aisément reconnaissables et s'organisent sous forme de régions très denses séparées par des zones moins denses et avec des espaces assez importants (entre 0,5 et 1 diamètre environ). Une telle organisation de billes en zones à empilement régulier compact séparées par des zones de défauts assez larges a été observée en empilement bidimensionnel par Lumay [76].

Le gaz (sombre) occupe une très faible fraction de l'image et se retrouve principalement dans les zones de défauts d'arrangement donc comportant les sections de passage les plus importantes. Le gaz s'organise dans ces zones de moindre compacité sous forme de canaux avec une allure proche de la digitation.

Le liquide (gris) occupe une très large majorité de la porosité, en accord avec les taux de rétention très élevés relevés dans la littérature spécialisée. Le liquide occupe l'intégralité des zones denses et des parois, où les billes sont arrangées de manière très régulières. Dans ces zones, la taille des passages est trop faible pour que le gaz puisse "ouvrir" les passages.

L'image présente un éclairage non constant (certaines billes près des bords sont plus grises que du liquide au centre), ce qui rend imprécise une estimation des taux de solide, gaz et liquide par analyse d'image. Il est également difficile de savoir si les structures observées sont résultent uniquement du tassement initial, ou ont été affectées par l'écoulement voir par une éventuelle évaporation.

### 2.3.3 Synthèse des observations expérimentales

Les observations réalisées dans des conditions de débit faible ou avec des lits fixes remplis avec des particules fines (60  $\mu\text{m}$ ) montrent que les écoulements n'étaient pas de type ruisselant (ni à bulle) mais plutôt de type capillaire avec une forte rétention liquide, une présence de gaz uniquement dans les zones les moins compactes.

L'injection de liquide dans un  $\mu$  lit fixe sec conduit à un mouillage total avec un front de progression du liquide régulier bien que non plan et non perpendiculaire à l'axe du tube. L'imbibition en  $\mu$  lit fixe est contrôlée par la tension de surface et conduit à un mouillage total.

Inversement, l'injection de gaz dans un  $\mu$  lit fixe mouillé conduit à une progression par à-coup du gaz selon une structure arborescente de type "digitation capillaire" comme prévu par la carte d'écoulement de Lenormand.

L'injection des deux phases gouverne le type d'écoulement en début de lit. Dans le cas d'une injection continue des deux phases, par exemple par un écoulement annulaire, la répartition des phases ne sera pas homogène avec séparation assez marquée des phases. De forts débits peuvent contribuer à des instabilités d'écoulements et à des mouvements de la position des interfaces [31, 69]. Une injection alternée des phases fluides, par exemple un écoulement de Taylor, conduit à une alternance temporelle de zones totalement mouillées par un processus de type "déplacement stable" et de zones asséchées par un processus de digitation capillaire.

En s'éloignant de la zone d'injection, les effets dynamiques s'estompent [77] et l'écoulement alterné devient progressivement un écoulement capillaire continu avec le gaz minoritaire dans les gros passages, et le liquide mouillant le reste de la porosité entre particules [71, 72, 39, 75, 69].

## 2.4 Écoulement capillaire en lit fixe

### 2.4.1 Écoulement capillaire

La synthèse de nos observations expérimentales et de la littérature conduit à proposer une typologie d'écoulement supplémentaire dans les lits fixes avec de petites particules. Dans la suite nous appellerons "écoulement capillaire" l'écoulement résultant de l'injection de gaz et liquide dans des conditions où la capillarité gouverne l'écoulement. L'écoulement capillaire se caractérise par :

- une phase liquide très majoritaire
- une phase gaz présente uniquement dans les plus gros passages entre objets sous forme de canaux et avec une structure arborescente
- un mouillage quasi total sauf peut-être dans les passages gaz
- un écoulement liquide principalement dans les passages "moyens"

La perte de pression dans les  $\mu$  lits fixes est due aux forces de viscosité. Le taux de rétention liquide (ou gaz) résulte de l'équilibre entre les pertes de pression gaz et liquide (décalée de la pression capillaire). Un débit de gaz plus élevé conduit à une pression amont plus importante ce qui va permettre au gaz d'occuper plus de pores et de développer de nouveaux passages. L'ouverture de passages étant liée au dépassement de seuils de pression capillaire, le taux de rétention du gaz augmentera "en escalier" (par saut) en fonction du débit gaz.

La gravité n'a pas d'effet sur l'écoulement capillaire.

## 2.4.2 Comparaison entre écoulement capillaire et écoulement à bulle

En écoulement ascendant, l'écoulement liquide est stabilisé à la fois par la gravité et les forces visqueuses. Le régime d'écoulement à bulle correspond au passage de bulles ou train de bulles dans le lit fixe rempli de liquide. Dans ce régime, les observations visuelles<sup>25</sup> d'écoulement à bulle ascendant par adaptation d'indice indiquent que les bulles passent toujours aux mêmes endroits et semblent suivre les passages les plus larges. En régime capillaire, le gaz circule également dans les passages les plus larges mais sous forme de canaux de gaz. Le régime capillaire est en quelque sorte un régime à bulle où les bulles sont très allongées et continues. La transition correspond à la disparition des interfaces bulles / liquides.

Dans ces deux régimes, le mouillage est quasi-total et la distribution du liquide est liée aux pertes de charge et donc à l'empilement. La dispersion radiale est probablement meilleure en écoulement à bulle : en effet, en écoulement capillaire, la dispersion radiale est assurée par la diffusion moléculaire (échelle de temps en minutes), alors qu'en écoulement à bulle (lit fixe millimétrique), l'agitation créée au passage des bulles / bouchons et les forts diamètres de passage permet d'uniformiser rapidement les concentrations sur toute la section (échelle de temps en seconde).

Le régime à bulle possède probablement des propriétés supérieures en terme de transfert de matière gaz-liquide du fait des alternances bulles / bouchons similaires à un écoulement de Taylor qui contribue à des renouvellements d'interface et des circulations [78, 79]. En calant un modèle, Bellos a effectivement proposé des coefficients de transfert de matière gaz-liquide plus petits de 30 % en présence de poudres fines [39] pour un réacteur opéré à même vitesses gaz et liquide. Inversement, il a été observé d'excellents transfert de matière dans les  $\mu$  lit fixes en canal étroit [70] et dans des mousses confinées à de petits canaux [74]. Cela a fait l'objet d'un brevet<sup>26</sup> déposé par IFPEN. Ces écarts de tendance proviennent probablement de l'effet de largeur du réacteur. En écoulement capillaire, l'alimentation en gaz des grains de catalyseurs situés "loin" des quelques passages gaz se réalise par diffusion moléculaire, et est donc plus lente que pour ceux situés près des passages gaz. Un réacteur large et avec peu de passages gaz apparaîtra moins performant en terme de transfert gaz-liquide.

---

<sup>25</sup> Travaux internes IFPEN non publiés.

<sup>26</sup> Brevet FR 2 956 040

En synthèse, d'un point de vue hydrodynamique et génie chimique, les écoulements à bulle et capillaire sont très proches à la dispersion radiale près. En écoulement ascendant, la transition entre les régimes est progressive avec un allongement progressif des bulles en diminuant la taille des passages.

### 2.4.3 Proposition de carte d'écoulement descendant G/L en $\mu$ -lit fixe

Les régimes d'écoulement à porter sur une carte d'écoulement gaz-liquide descendant sont à minima l'écoulement ruisselant et l'écoulement capillaire. Le régime ruisselant peut être déstabilisé par la gravité dans le cas où les forces visqueuses sont insuffisantes pour stabiliser le front d'avancement du liquide [18]. Nous appellerons écoulement gravitaire un tel écoulement où la distribution du liquide n'est pas uniforme sur la section et où le mouillage est incomplet et très insuffisant.

Une carte d'écoulement descendant dans les  $\mu$  lit fixe doit permettre de prédire la transition entre ces trois écoulements. Les forces à prendre en compte sont : capillarité, forces visqueuses et gravité, ce qui permet a priori de définir 3 ratios, dont deux indépendants :

- Nombre capillaire = visqueuse / capillarité
- Nombre d'irrigation = viscosité / gravité
- Nombre de Bond = gravité / capillarité

Nous écartons les phénomènes d'inertie car les nombre de Reynolds en lit fixe sont très faibles ( $Re \sim 1$ ).

Sur la carte de Lenormand, le nombre capillaire permet de décrire la transition entre écoulement stable et écoulement à digitation visqueuse (drainage). Nous proposons d'utiliser le nombre capillaire sur la phase liquide comme un critère de transition entre écoulement gouverné par la capillarité (écoulement capillaire) et écoulement gouverné par les forces visqueuses (écoulement laminaire gouverné par la viscosité).

$$Ca = \frac{\mu_l u_{ls}}{\sigma}$$

Sur des bases expérimentales et de simulation, Lenormand [65] a proposé une transition vers une valeur de  $Ca \sim 10^{-4}$  (basé sur la vitesse superficielle) pour le drainage.

Pour la transition entre ruisselant et gravitaire, nous proposons de nous inspirer du critère de Sie [18]. Comme discuté dans le chapitre 1, nous pensons que ce critère est plus un critère d'irrigation (ou de distribution) qu'un critère de mouillage. Ce nombre ne tient pas compte de la densité du gaz qui peut être importante dans les unités opérées avec de fortes pressions ( $\sim 150 \text{ kg/m}^3$ ). Nous proposons donc de le modifier en incluant la force d'Archimède et en l'appelant nombre d'irrigation :

$$I = \frac{\mu_l \cdot u_{ls}}{(\rho_l - \rho_g) \cdot g \cdot d_p^2}$$

Nous retenons la même valeur du critère de transition que Sie ( $4 \cdot 10^{-6}$ ) : si cette valeur est dépassée alors l'écoulement est ruisselant. Du fait de la très forte sensibilité de la valeur du critère<sup>27</sup> sur le taux de liquide, le critère doit plus être pris comme une indication.

La transition entre écoulement capillaire et écoulement gravitaire peut être estimée au moyen du nombre de Bond. La hauteur de remontée d'un fluide dans un tube de rayon R est donnée par la loi de Jurin :

$$h = \frac{2\sigma \cdot \cos \theta}{(\rho_l - \rho_g) \cdot g \cdot R}$$

Les effets gravitaires dominant si  $h \ll R$ , donc si  $\frac{2\sigma \cdot \cos \theta}{(\rho_l - \rho_g) \cdot g \cdot R} \ll R$ . Le diamètre d'un passage entre grain est de l'ordre de  $d_p/6$ . En posant  $\cos \theta = 0.5$ , le critère devient  $1 \ll \frac{(\rho_l - \rho_g) \cdot g \cdot d_p^2}{36 \cdot \sigma}$ , soit en faisant apparaître le nombre de Bond :

$$B = \frac{(\rho_l - \rho_g) \cdot g \cdot d_p^2}{\sigma} \gg 36$$

Ce critère de transition revient à  $I = Ca / 36$  et correspond à une droite à  $45^\circ$  dans le repère  $Ca - I$ . Le ratio des critères de transition  $I/Ca = 4 \cdot 10^{-6} / 10^{-4}$  vaut  $1/25$ , valeur proche de  $1/36$ . Les 3 frontières de transition sont concourantes.

Sur la base de ces critères, issus de la littérature et de notre réflexion, nous proposons une nouvelle carte d'écoulement en régime gaz-liquide descendant pour les pilotes (Figure 29).

---

<sup>27</sup> Le critère est calculé avec la formule : 
$$\frac{\varepsilon_l^4 \cdot d_p^2 \cdot \rho_l \cdot g}{180 \cdot \mu_l \cdot (1 - \varepsilon_l)^2 \cdot u_{ls}}$$

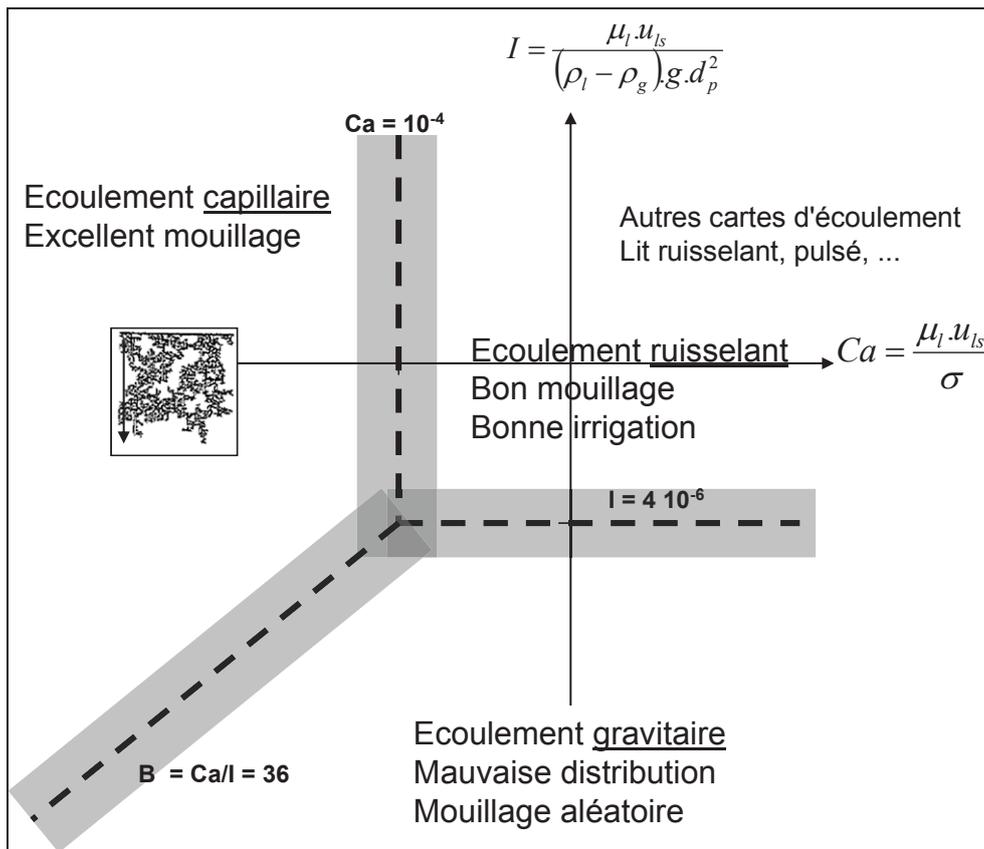


Figure 29 : Proposition de carte d'écoulement gaz-liquide descendant en pilote lit fixe

## 2.5 Conséquence pour le génie chimique des réacteurs pilotes

En régime capillaire, la direction de l'écoulement (verticale ou horizontale) n'a pas d'effet sur la réactivité apparente comme confirmé par Bellos [39].

Dans les zones de forte compacité, la taille des passages est minimale avec pour conséquence de fortes pertes de charge (de forts taux de cisaillement) : le liquide, plus visqueux, préférera contourner les zones compactes plutôt que de couler au travers. Au vu des résultats de DTS de Van Herk [30] qui montrent qu'à faible débit liquide le temps de séjour moyen du liquide est plus faible que le temps théorique, nous proposons même que dans ces zones compactes, le liquide soit stagnant. Le mécanisme de transport dans ces zones pourra être la diffusion moléculaire, donc assez lent et conduisant à des volumes morts. Un empilement de grains anguleux (de type concassés) est a priori plus intéressant que des billes car ces grains ne permettent pas la réalisation de zones "compactes" comme observées avec les billes. Avec des particules non régulières, les passages les plus larges sont uniformément distribués sur la section du réacteur. Une distribution granulométrique très étalée vers les fines est à proscrire

car les fines joueront le rôle de barrière sur le gaz. L'hydrodynamique étant contrôlée par la position des passages les plus larges et plus petits, la manière dont les particules sont arrangées, notamment la compacité, peut avoir une forte influence [31, 30, 28, 32]. Les procédures de chargement doivent être soigneusement définies et appliquées.

Du fait de la circulation en "passage gaz" et de la présence de zone compact (liquide stagnant), les répartitions du gaz et du liquide ne sont pas homogènes sur chaque section, ni identiques sur toutes les sections. L'homogénéisation radiale du lit se fait par diffusion radiale : un réacteur de faible diamètre est recommandé. Bellos a ainsi observé qu'un réacteur de 8 mm de diamètre apparaissait plus performant (+ 50 % sur l'activité catalytique apparente) qu'un réacteur de 25 mm de même hauteur [39].

Les phases gaz et liquide circulent dans des passages distincts : il y a peu d'interaction hydrodynamique entre les phases. Cela a pour première conséquence que les propriétés du lit fixe mesurées sur la phase liquide ( $Bo$ , transfert de matière) dépendent du débit liquide et peu du débit gaz [71, 75]. Le gaz n'est pas un facteur de mélange comme dans les écoulements à bulles. En écoulement capillaire, augmenter le ratio  $H_2/HC$  n'a que peu d'effet sur l'hydrodynamique et donc sur la réaction. Une deuxième conséquence est que le transfert de matière gaz-liquide sera plus lié à l'aire d'interface (canaux longs et étroits) qu'à l'interaction hydrodynamique entre le gaz et le liquide. Une augmentation du débit gaz peut conduire à plus de passages gaz, avec un effet positif sur le transfert G/L via une distance de diffusion plus faible et une aire interfaciale plus élevée, mais cette ouverture de passages sera réalisée de manière discontinue (en escalier en fonction du débit). Changer la longueur d'un  $\mu$ -lit fixe à iso VVH ne permet probablement pas de statuer sur la présence de limitations diffusionnelles car les variations de vitesses, donc de pression, sont faibles et insuffisantes pour conduire à une modification de l'hydrodynamique. Une troisième conséquence, comme discuté au paragraphe précédent (comparaison avec l'écoulement à bulle) est que la dispersion radiale est assurée uniquement par la diffusion moléculaire et non plus par le mélange induit par le passage alterné de bulles et bouchons. Du coup, la distance entre le catalyseur et le passage gaz le plus proche devient un facteur déterminant et pour des réacteurs assez larges (> 15 mm), les transferts de matière gaz / liquide sont plus faibles qu'en écoulement à bulle. Les réacteurs étroits présenteront de meilleurs transferts gaz-liquide.

Le nombre de Bodenstein en écoulement gaz-liquide (basé sur les particules fines) étant compris entre 0.1 et 0.25, les réacteurs fonctionnant en régime capillaire présentent des  $Pe$  très élevés ( $Pe = Bo \cdot \frac{L}{d_p}$ , avec  $\frac{L}{d_p} \approx \frac{10cm}{60\mu m} \approx 1600$ ) et sont adaptés à l'étude des réactions poussées. La faible dispersion radiale conduit à ce que les défauts de chargement ne soient pas corrigés radialement comme usuellement mais plutôt sur la longueur (effet de moyenne). Les réacteurs larges devront être longs.

## 2.6 Conclusion : écoulement gaz-liquide en $\mu$ lit fixe.

L'utilisation de particules fines pour remplir la porosité entre les catalyseurs millimétriques conduit à une modification des importances relatives des effets capillaires. Dans certaines conditions, un écoulement capillaire peut se mettre en place. Cet écoulement se caractérise par un mouillage quasi total des solides, une phase gaz passant dans les passages les plus gros et une partie de la phase liquide potentiellement stagnante dans les parties les plus compactes de l'empilement de particule. La physique de cet écoulement semble contrôlée par les particules les plus fines.

Une carte d'écoulement est proposée pour prédire les transitions entre les régimes capillaires, ruisselant et gravitaires (Figure 29). Le régime gravitaire est à éviter absolument en test catalytique : la distribution du liquide et le mouillage sont imparfaits de sorte qu'une partie du lit catalytique ne travaillera pas. L'utilisation de particules fines permet de travailler avec un écoulement capillaire. En présence de plusieurs diamètres de particules, le diamètre de particule à prendre en compte dans les calculs des critères est celui de la poudre fine.

L'écoulement capillaire est très ressemblant à un écoulement à bulle avec cependant une moindre interaction entre les phases gaz et liquide du fait que l'aire interfaciale gaz-liquide est restreinte aux passages entre solide. Cela a pour conséquence un moindre transfert de matière gaz-liquide. La dispersion radiale est assurée par la diffusion moléculaire et est donc très faible. Des réacteurs étroits et longs sont alors recommandés pour moyenniser les éventuels défauts de chargement.