



HAL
open science

Revue des aspects hydrodynamiques des réacteurs catalytiques gaz-liquide-solide à lit fixe arrosé

A. Attou, Claudine Boyer

► To cite this version:

A. Attou, Claudine Boyer. Revue des aspects hydrodynamiques des réacteurs catalytiques gaz-liquide-solide à lit fixe arrosé. Oil & Gas Science and Technology - Revue d'IFP Energies nouvelles, 1999, 54 (1), pp.29-66. 10.2516/ogst:1999003 . hal-02075773

HAL Id: hal-02075773

<https://hal-ifp.archives-ouvertes.fr/hal-02075773>

Submitted on 21 Mar 2019

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.



Distributed under a Creative Commons Attribution| 4.0 International License

Revue des aspects hydrodynamiques des réacteurs catalytiques gaz-liquide-solide à lit fixe arrosé

A. Attou¹ et C. Boyer²

¹ Centre technologique international Terre et Pierre, chaussée d'Antoing 55, 7500 Tournai - Belgique

² Institut français du pétrole, CEDI René Navarre - Solaize BP 3, 69390 Vernaison Cedex - France

Résumé — Bien que les aspects hydrodynamiques soient d'une importance primordiale lors de la conception et du fonctionnement d'un réacteur gaz-liquide-solide à lit fixe arrosé, les méthodes de calcul prédictif proposées sont restées fort rudimentaires. La plupart des études portant sur ce sujet ont été menées dans des conditions quasi atmosphériques alors que les réacteurs industriels fonctionnent à des pressions élevées. C'est seulement récemment que quelques résultats expérimentaux ont été obtenus à des hautes pressions, et des corrélations ont été proposées dans ces conditions pour prédire la transition entre les régimes ruisselant et pulsé, la perte de pression et le taux de rétention de liquide. L'objectif de cet article est double. D'une part, une synthèse y est présentée ; elle fait état des connaissances acquises sur les divers aspects hydrodynamiques du réacteur triphasique à lit fixe, incluant les récents développements réalisés à hautes pressions. D'autre part, les modèles et les corrélations actuels de transitions de régimes, de la perte de pression et du taux de rétention de liquide sont soumis à une analyse critique en confrontant leurs prédictions à l'ensemble des données expérimentales obtenues pour un large intervalle de la pression de fonctionnement du réacteur.

Des conclusions objectives ont pu être tirées concernant les aptitudes des corrélations et des modèles actuels à être utilisées pour les calculs de conception des réacteurs triphasiques à lit fixe industriels. Malheureusement, il apparaît qu'aucun modèle de transitions entre les régimes ruisselant et pulsé n'est satisfaisant. Seule la corrélation empirique de Larachi *et al.* (1993) s'avère être jusqu'à présent la méthode la plus précise pour prédire la position de la frontière entre les régimes ruisselant et pulsé dans un large domaine de la pression de fonctionnement. Par ailleurs, aucune corrélation empirique de la perte de pression et du taux de rétention de liquide ne correspond à une erreur relative moyenne de prédiction acceptable. Seul le modèle phénoménologique étendu d'Al-Dahhan *et al.* (1998) semble constituer une technique satisfaisante pour la prédiction des deux paramètres hydrodynamiques en régime ruisselant. Néanmoins, son principal inconvénient réside dans la nécessité de déterminer préalablement les deux coefficients du modèle au moyen d'expériences sur des écoulements monophasiques gazeux. De telles expériences restent difficiles à réaliser dans la pratique.

Il est cependant regrettable de constater qu'aucune des ces méthodes, qui se distinguent par leurs résultats, n'est basée sur une approche physique des phénomènes hydrodynamiques permettant d'améliorer la connaissance de ces écoulements et de prédire leur comportement en dehors des domaines de conditions expérimentales testées. De ce travail, il ressort la nécessité d'appliquer les outils classiques de la mécanique des fluides diphasique à la description de ces écoulements, en apportant une attention particulière aux phénomènes d'interactions hydrodynamiques auxquelles sont soumises les trois phases du système (gaz, liquide et solide).

Mots-clés : réacteur gaz-liquide-solide à lit fixe arrosé, hydrodynamique, écoulement diphasique, transition de régimes, perte de pression, taux de rétention de liquide, lit granulaire.

Abstract — *Hydrodynamics of Gas-Liquid-Solid Trickle-Bed Reactors: a Critical Review* — While it is recognised that the hydrodynamic aspects have a considerable importance in the design and the operation of gas-liquid-solid trickle-bed reactors, the accuracy of the proposed calculation methods remains poor. Most studies in this field have been performed in atmospheric conditions in contrast of industrial reactors operating at quite high pressures. Only recently, some experimental results have been obtained at elevated pressures and correlations have been proposed in these conditions in order to predict the trickling-pulsing transition, the

pressure drop and the liquid holdup. The scope of this article is twice. Firstly, the knowledge on the several hydrodynamic aspects of three-phase trickle-bed reactors, including the recent developments performed at high operating pressures, is summarised. Secondly, the models and the correlations of regimes transitions, pressure drop and liquid holdup are submitted to critical evaluations by comparing their predictions with the set of experimental data obtained in a wide range of operating pressure.

Some conclusions have been deduced concerning the ability of the correlations and the models to be used in the design procedures of industrial three-phase trickle-bed reactors. Unfortunately, it is shown that there is no model of trickling-pulsing regimes transitions which gives satisfactory results. Up this time, the empirical correlation of Larachi et al. (1993) is found to be the more accurate method for the prediction of the location of the boundary between the trickle and pulsed regimes in a wide range of operating pressure. In the other hand, no empirical correlation of pressure drop and liquid holdup corresponds to an acceptable mean relative error of prediction. To now, the phenomenological extended model of Al-Dahhan et al. (1998) appears to be the more satisfactory method for the predictions of the two hydrodynamic parameters in the trickle flow regime. However, it is necessary to determine the two coefficients of the model from experiments to be performed in single-phase gas flow.

Finally, it is recommended to apply the two-phase fluid mechanics tools for describing of the gas-liquid flow through fixed bed reactors by devoting a particular attention to the hydrodynamic interactions phenomena between the three phases of the system (gas, liquid and solid).

Keywords: gas-liquid-solid trickle-bed reactor, hydrodynamics, two-phase flow, regime transition, pressure drop, liquid holdup, packed-bed.

NOMENCLATURE

a_s	aire spécifique de la surface du lit calculée par $6(1-\varepsilon)/d_p$, mm^{-1}	u_K	vitesse interstitielle du fluide K , m/s
a_{LS}	$= a_s + (4/D)$, aire spécifique de contact liquide-solide prenant en compte la surface de la colonne du réacteur, m^{-1}	z	distance suivant la direction axiale, m.
d_p	diamètre effectif de la particule, m	Lettres grecques	
d_e	diamètre équivalent du canal interstitiel défini par $(2/3)d_p \varepsilon/(1-\varepsilon)$, m	β_d	saturation dynamique de liquide
d_h	diamètre hydraulique de Krischer-Kast défini par $(16 \varepsilon^3/(9\pi(1-\varepsilon)^2))^{1/3} d_p$, m	β_t	saturation totale de liquide (volume total de liquide/volume de l'espace vide)
D	diamètre du réacteur, m	$\Delta p/\Delta z$	perte de pression par unité de hauteur de réacteur, Pa/m
E_1, E_2	paramètres d'Ergun	ε	porosité globale du lit
F_K	force de traînée exercée sur le fluide K ($K = G$ ou L), N/m^3	ε_L	taux de rétention total de liquide (volume total de liquide/volume total du réacteur)
f_{LG}	coefficient de frottement diphasique défini par $(\Delta p/\Delta z)_{LG} d_e/(2\rho_G j_G^2)$	ε_G	taux de rétention total de gaz donné par $\varepsilon - \varepsilon_L$
f_V, f_S	facteurs représentant respectivement le rapport des vitesses phasiques et le rapport des contraintes de cisaillement phasiques à l'interface gaz-liquide	μ_K	viscosité dynamique du fluide K , kg/m s
g	accélération due à la gravité, m/s^2	ρ_K	masse volumique du fluide K , kg/m^3
G_K	$= \rho_K j_K$, vitesse massique superficielle du fluide K , $\text{kg/m}^2 \text{s}$	σ	tension de surface, N/m
j_K	vitesse superficielle du fluide K basée sur la section totale du réacteur, m/s	λ, ψ	paramètres de correction prenant en compte les variations des propriétés physiques des fluides par rapport à celles du système eau-air
k	perméabilité du milieu granulaire, m^2	ϕ	paramètre de correction prenant en compte l'effet de la pression de fonctionnement du réacteur sur la position de la frontière entre les régimes ruisselant et pulsé.
p	pression de fonctionnement du réacteur, Pa	Groupements adimensionnels	
p_K	pression du fluide K , Pa	Fr_L	$u_L^2/(g d_p)$, nombre de Froude du liquide
t	temps, s	Ka	$\sigma \rho_L/(g \mu_L^4)$, nombre de Kapitza du liquide
		Ga	$d_p^3 \rho_L^2 g/\mu_L^2$, nombre de Galiléo ; dans les modèles de Holub <i>et al.</i> (1993) et d'Al-Dahhan <i>et al.</i> (1998) ce nombre est défini par :
			$Ga = d_p^3 \rho_L^2 g/\mu_L^2(1-\varepsilon)^3$

Ga^*	$d_p^3 \rho_L (\rho_L g + \Delta p/\Delta z)/\mu_L^2$, nombre de Galiléo corrigé par la force associée au gradient de pression
Ga'	$d_p/(\mu_L^2/(g \rho_L^2))^{1/3}$, nombre de Galiléo modifié
Re_K	$d_p \rho_K j_K/\mu_K$, nombre de Reynolds du fluide K ; dans les modèles de Holub <i>et al.</i> (1993) et d'Al-Dahhan <i>et al.</i> (1998) ce nombre est défini par : $Re_K = d_p \rho_K j_K/\mu_K(1-\epsilon)$
Re_i	$d_p \rho_L j_{iL}/\mu_L(1-\epsilon)$, nombre de Reynolds du liquide à l'interface gaz-liquide
X	$[(dp/dz)_L/(dp/dz)_G]^{1/2}$, paramètre de Lockhart et Martinelli (1949)
X'	$(\xi_L/\xi_G)^{1/2}$ avec $\xi_K = (G_K/\epsilon)[(1/\rho_K)(\Delta p_K/\Delta z)/(\rho_K g) + (1/\rho_{eau})]$ ($K = G$ ou L)
X_L	$X_G^{-1} = (We_L/We_G)^{1/2}$, paramètre de Lockhart et Martinelli modifié par Ellman <i>et al.</i> (1988)
Φ_K	$[(dp/dz)_{LG}/(dp/dz)_K]^{1/2}$, paramètre multiplicatif diphasique pour la perte de pression
Ψ_K	$(\Delta p/\Delta z)/(\rho_K g) + 1$, forme adimensionnelle de la perte de pression dans le fluide K
We_K	$\rho_K j_K^2 d_p/\sigma$, nombre de Weber du fluide K
Z	$Re_G^{1,167}/Re_L^{0,767}$, variable adimensionnelle de Turpin et Hundington (1967).

Indices

d	dynamique
G	phase gazeuse
i	interface
K	fluide K ($K = G$ ou L)
L	phase liquide
LG	système liquide-gaz
$stat$	statique
t	total
tr	transition entre les régimes ruisselant et pulsé.

INTRODUCTION

Beaucoup de procédés de raffinage et de pétrochimie nécessitent une réaction entre plusieurs phases fluides en présence d'un catalyseur solide. Les points d'ébullition des espèces constituant chaque phase étant souvent fort éloignés, l'utilisation d'un réacteur multiphasique est inévitable. Il existe plusieurs types de réacteurs multiphasiques (Shah, 1975 ; Trambouze, 1991) : les réacteurs *slurry*, à lit fixe, à lit fluidisé, à lit mobile, à disques rotatifs, les colonnes à bulles, etc. Chaque type de réacteur a ses propres avantages et inconvénients (Satterfield, 1975). Le système multiphasique auquel on s'intéresse dans le présent article est le réacteur catalytique gaz-liquide-solide à lit fixe arrosé. Ce dernier consiste en une colonne verticale contenant un lit fixe de particules solides catalytiques sur lequel s'écoulent vers le bas les

phases liquide et gazeuse renfermant les réactifs et les produits de la réaction (fig. 1). Le réacteur à lit fixe arrosé connaît une utilisation extensive dans l'industrie du raffinage pétrolier. L'hydrodésulfurisation des fractions pétrolières, l'hydrocracking catalytique en phase liquide, l'hydrogénation sélective des coupes C_3 et C_4 , et l'hydrodénitrogénéation sont des exemples de procédés réalisés dans ce type de réacteur.

Le fonctionnement en écoulement cocourant descendant est généralement retenu dans la pratique parce que celui-ci correspond à une meilleure stabilité mécanique comparée au fonctionnement en écoulement cocourant ascendant et qu'il permet d'éviter tout risque de fluidisation. En effet, en écoulement cocourant ascendant, les particules catalytiques ont tendance à fluidiser ou à s'écraser contre la grille. De plus, le fonctionnement en cocourant descendant permet de réduire le coût des pompes.

Un des avantages essentiels du réacteur à lit fixe arrosé réside dans son haut degré de conversion comparé à ceux obtenus dans les autres réacteurs gaz-liquide-solide pour lesquels le catalyseur est mobile (Goto et Smith, 1975 ; Hofmann, 1978 ; Shah, 1979). Cette caractéristique est due, entre autres, au faible rapport volumique liquide/solide qui défavorise les réactions parasites en phase homogène.

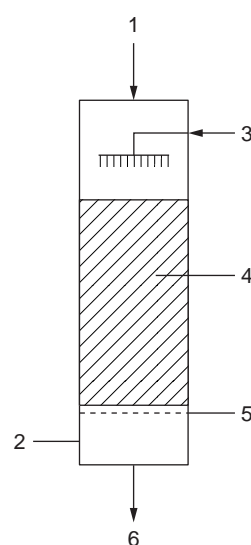


Figure 1

Représentation schématique d'un réacteur catalytique gaz-liquide-solide à lit fixe arrosé ; 1 : entrée de gaz, 2 : sortie de gaz, 3 : distributeur de liquide, 4 : lit fixe de particules catalytiques, 5 : support du catalyseur, 6 : produits liquides (Zhukova *et al.*, 1990).

*Schematic representation of a gas-liquid-solid catalytic fixed bed reactor (so-called trickle-bed reactor); 1: as inlet, 2: gas outlet, 3: distributor of liquid, 4: fixed bed of catalytic particles, 5: catalyst support, 6: liquid products (from Zhukova *et al.*, 1990).*

Son principal inconvénient est la faible capacité thermique qui favorise la formation des points chauds lors d'une réaction fortement exothermique. Cet effet peut être atténué lorsque la phase liquide mouille la quasi-totalité de la surface du support solide du catalyseur et que celle-ci est uniformément répartie sur la section droite du réacteur. Un autre inconvénient de ce réacteur apparaît dans le fait que le diamètre des particules solides est de l'ordre de 10 à 100 fois plus grand que ceux employés dans les autres systèmes. Par conséquent, la surface active de réaction y est moins importante. L'utilisation de particules solides de plus petits diamètres conduirait à une perte de pression fort élevée et donc à une dépense considérable d'énergie pour faire circuler les phases fluides à travers le système. Cependant, la conception du réacteur à lit fixe arrosé et son fonctionnement sont simples : les particules catalytiques sont immobiles et donc aucune opération de séparation des grains n'est nécessaire. Cette caractéristique assure des frais d'investissement et de fonctionnement raisonnables.

Les connaissances acquises sur les divers phénomènes observés dans les réacteurs à lit fixe arrosé ont été discutées par plusieurs auteurs (Satterfield, 1975 ; Hofmann, 1977, 1978 ; Gianetto *et al.*, 1978 ; Herskowitz et Smith, 1983 ; Charpentier, 1979, Gianetto et Silveston, 1986 ; Gianetto et Specchia, 1992). Malgré l'abondante recherche effectuée dans ce domaine, beaucoup de questions fondamentales restent ouvertes concernant la conception et l'extrapolation de ces réacteurs. La majeure partie des études réalisées concerne les écoulements eau-air à travers des garnissages non poreux qui sont utilisés dans les colonnes d'absorption. Cependant, il est à noter que les conditions de fonctionnement, les caractéristiques géométriques et le rôle du garnissage sont fort différents pour les deux types de systèmes (réacteurs à lit fixe et colonnes d'absorption). De plus, les travaux existants ont surtout été effectués dans les conditions de pression et de température ambiantes alors qu'en réalité les réacteurs à lit fixe arrosé fonctionnent le plus souvent dans des conditions de hautes pressions et de hautes températures. Les propriétés physiques des fluides et la solubilité du gaz dans le liquide dépendent fortement de la pression et de la température. Par ailleurs, les études effectuées dans les laboratoires concernent des colonnes de petits diamètres (inférieurs à 30 cm) comparés à ceux caractérisant les réacteurs industriels (de l'ordre de 1 à 2 m). Ainsi, il est difficile d'exploiter les données obtenues sur les colonnes de laboratoires afin d'analyser les phénomènes à l'origine des écarts de l'écoulement à travers les réacteurs industriels par rapport à la configuration idéale (dite « écoulement piston ») : les effets de la dispersion axiale, du mouillage partiel de la surface du catalyseur et de la mauvaise distribution radiale des phases en écoulement. Ces écarts à l'idéalité, qui ont des conséquences sur le comportement hydrodynamique ainsi que sur les transferts de masse et de chaleur, conditionnent d'une manière déterminante les performances du réacteur.

Les phénomènes physicochimiques qui se déroulent dans un réacteur à lit fixe arrosé peuvent être considérés comme étant de deux natures (L'Homme, 1979) :

- les phénomènes de transport des molécules à travers les interfaces gaz-liquide, liquide-solide et gaz-solide se produisant à l'échelle du pore actif de la particule de catalyseur où a lieu la réaction chimique ;
- les phénomènes relatifs à l'hydrodynamique du système gaz-liquide en écoulement, au transfert de chaleur vers le milieu extérieur, à la dispersion axiale des constituants et à la distribution de temps de séjour des phases. Ces phénomènes de natures globales concernent la totalité du réacteur ou des ensembles macroscopiques formés d'un grand nombre de particules solides.

En général, les approches suivies par les auteurs pour décrire ces phénomènes sont restées empiriques : d'abondantes corrélations de cet ordre ont été développées sur la base de données expérimentales obtenues pour des caractéristiques géométriques et des conditions physiques particulières. L'utilisation de ces corrélations pour la conception et l'extrapolation à partir des réacteurs de laboratoire aux réacteurs industriels reste incertaine.

Il est admis par les auteurs que les aspects hydrodynamiques sont d'une importance primordiale lors de la conception et du fonctionnement du réacteur à lit fixe (Baldi, 1981). Cependant, les revues publiées dans la littérature ne traitent de ces aspects que d'une manière peu exhaustive. Ainsi, l'objectif essentiel de cet article est de présenter une revue critique concernant l'hydrodynamique de l'écoulement gaz-liquide cocourant descendant à travers un réacteur à lit fixe. Les aspects qui sont examinés relèvent des régimes d'écoulement gaz-liquide, de la perte de pression et du taux de rétention de liquide. Une attention particulière est attribuée aux travaux récents effectués sur des réacteurs fonctionnant à hautes pressions et aux limitations des corrélations et des modèles actuels développés dans ces conditions. Des recommandations sont proposées pour la détermination pratique des paramètres hydrodynamiques.

1 RÉGIMES HYDRODYNAMIQUES DANS LES RÉACTEURS À LIT FIXE ARROSÉ

L'écoulement simultané des phases fluides à travers l'espace vide d'un milieu granulaire met en jeu une interface gaz-liquide pouvant présenter diverses structures géométriques. Ces structures se nomment configurations ou régimes d'écoulement. Pour mieux appréhender et modéliser les mécanismes de transfert (masse, quantité de mouvement et énergie) dans un réacteur à lit fixe arrosé, l'identification des régimes d'écoulement et la détermination des positions de leurs frontières sont primordiales. Par ailleurs, la distribution des phases fluides et le degré de contact entre les fluides et le catalyseur solide sont conditionnés par la nature du régime

hydrodynamique. Enfin, la mise en fonctionnement du réacteur dans un régime particulier nécessite de disposer de moyens permettant d'identifier la configuration de l'écoulement pour des conditions de fonctionnement données et réciproquement.

Diverses techniques ont été utilisées par les auteurs pour identifier et analyser les régimes d'écoulement et leurs transitions : les observations visuelles ou optiques, la méthode électroconductimétrique, la méthode thermoconductimétrique, les mesures de fluctuations de la perte de pression et de la moyenne de cette grandeur, la variation du coefficient de transfert de masse et les techniques tomographiques.

La méthode la plus employée est l'observation visuelle. Le caractère subjectif de cette méthode explique la variété d'appellations attribuées aux différents régimes et l'incertitude sur leurs frontières. Des développements récents sont menés dans le but de caractériser d'une manière plus objective les structures locale et instantanée caractérisant les régimes d'écoulement gaz-liquide à travers un milieu granulaire. Ainsi, Latifi *et al.* (1992) ont exploré la possibilité d'utiliser la technique des microélectrodes pour l'identification des régimes hydrodynamiques. Reinecke et Mewes (1997) ont signalé l'intérêt d'exploiter la technique tomographique à capacitance pour la caractérisation de l'écoulement à travers un réacteur à l'échelle pilote pour lequel l'observation visuelle est quasi sans intérêt. Enfin, Horowitz *et al.* (1997) ont montré que les méthodes non conventionnelles d'analyse du signal telles que les calculs de l'écart-type, de la puissance spectrale de Fourier et de l'exposant d'Hurst constituent des approches intéressantes pour la détermination des positions des frontières entre les régimes hydrodynamiques.

Ces méthodes présentent des perspectives fort intéressantes dans la mesure où leurs prédictions se sont montrées en accord avec les observations visuelles.

1.1 Phénoménologie des régimes hydrodynamiques

Pour un réacteur à lit fixe arrosé, on peut distinguer essentiellement quatre régimes d'écoulement en fonction des débits massiques de gaz et de liquide, des propriétés physicochimiques des fluides et des caractéristiques géométriques du milieu granulaire. Ces régimes sont illustrés dans la figure 2.

Aux faibles débits de liquide et de gaz, le liquide s'écoule sur la surface des particules sous la forme de films et de filets alors que le gaz s'écoule dans l'espace vide du milieu granulaire. Ce régime dit ruisselant peut être divisé en deux régions (Ng et Chu, 1987). Aux très faibles débits, l'écoulement de liquide est laminaire et l'énergie cinétique spécifique du liquide n'est pas suffisante pour vaincre les forces de tension superficielle localisées aux interfaces liquide-solide. Dans ces conditions, une certaine fraction de la surface des particules reste non mouillée : c'est le régime ruisselant à mouillage partiel. Lorsque le débit de liquide augmente suffisamment,

la surface du garnissage devient complètement couverte de film liquide et le régime à mouillage partiel fait place au régime ruisselant à mouillage complet.

Quand les débits de gaz et/ou de liquide deviennent relativement élevés, un régime pulsé apparaît. Ce dernier est caractérisé par la succession de poches riches en gaz et de bouchons riches en liquide. Certains chercheurs attribuent l'apparition de ce régime comme étant due à l'obstruction des canaux de passage à l'échelle du pore par un bouchon de liquide (Sicardi *et al.*, 1979 ; Sicardi et Hofmann, 1980 ; Ng, 1986), d'autres comme étant occasionnée par l'instabilité du film de liquide à l'échelle macroscopique (Grosser *et al.*, 1988 ; Holub *et al.*, 1993). Par contre, Krieg *et al.* (1995) ont suggéré que la transition vers le régime pulsé ne résulte pas de la propagation des petites perturbations à l'échelle macroscopique du lit mais se définit plutôt comme l'état dans lequel le déplacement de ces petites perturbations devient mesurable. Les bouchons apparaissent en premier lieu toujours en pied du réacteur puisque la vitesse interstitielle du gaz y est la plus élevée à cause de la plus faible valeur de la pression (Weekman et Myers, 1964 ; Talmor, 1977). Lorsque le débit de gaz est quelque peu augmenté, le point d'apparition du bouchon de liquide se déplace vers la partie supérieure du réacteur. Le bouchon de liquide contient des petites bulles de gaz et la poche gazeuse renferme des films de liquide à la surface des particules solides. Lorsque le bouchon traverse le réacteur vers le bas, il perd à sa partie aval du liquide qui décélère et vient alimenter le film recouvrant le solide. La vitesse moyenne du liquide dans le bouchon est donc supérieure à celle dans la poche gazeuse. La vitesse du bouchon est déterminée par la vitesse interstitielle du gaz tandis que la fréquence de passage des bouchons dépend de la vitesse superficielle du liquide en excès par rapport à la valeur critique caractérisant la transition (Blok et Drinkenburg, 1982 ; Christensen *et al.*, 1986).

Quand le débit de gaz devient très élevé et pour des débits de liquide relativement faibles, la force de cisaillement exercée par le gaz sur le liquide s'intensifie à un point tel que des gouttelettes sont arrachées de l'interface instable. Ainsi, une partie du liquide s'écoule sur la surface du garnissage sous forme de filets et de films et l'autre partie est entraînée par le gaz sous forme de gouttelettes : c'est le régime à brouillard. Au contraire, quand le débit de liquide est très élevé et pour des débits de gaz relativement faibles, l'énergie de turbulence dans la phase continue liquide devient suffisante pour disperser le gaz sous forme de bulles légèrement allongées. Si le débit de gaz est légèrement augmenté, la forme des bulles devient fortement irrégulière.

Pour des liquides moussants (le kérosène et le gazole par exemple), la croissance des débits de gaz et/ou de liquide conduit à la transition du régime ruisselant au régime mousseux, puis à un régime pulsé-mousseux, pour enfin se trouver dans les régimes pulsé et à brouillard (Charpentier et Favier, 1975 ; Midoux *et al.*, 1976 ; Morsi *et al.*, 1978, 1982 ; Sai et Varma, 1988).

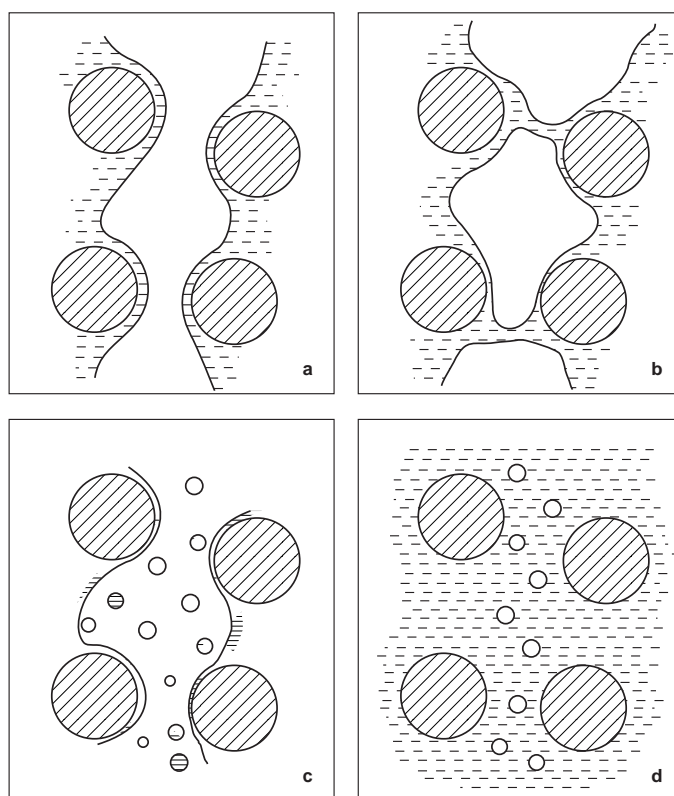


Figure 2

Représentation schématique des régimes hydrodynamiques dans un réacteur catalytique gaz-liquide-solide à lit fixe arrosé : (a) régime ruisselant, (b) régime pulsé, (c) régime à brouillard, (d) régime à bulles (Reinecke et Mewes, 1997).

Schematic representation of the hydrodynamic regimes in a trickle-bed reactor: (a) trickle flow, (b) pulse flow, (c) spray flow, (d) bubble flow (from Reinecke and Mewes, 1997).

De nombreuses études expérimentales ont été conduites dans des conditions de pression atmosphérique afin de mettre en évidence l'influence de divers paramètres sur les transitions de régimes.

Parmi les paramètres analysés, on peut citer les débits massiques du liquide et du gaz, les propriétés physiques des fluides, le caractère mousseux du liquide, la forme et la taille des particules solides ainsi que leur mouillabilité et la porosité globale du lit. En l'absence de théorie générale décrivant les mécanismes qui régissent les différentes transitions, les auteurs ont présenté graphiquement leurs résultats expérimentaux sous forme de cartes bidimensionnelles de régimes d'écoulement gaz-liquide.

1.2 Cartes de régimes hydrodynamiques

Diverses coordonnées ont été utilisées par les auteurs pour établir leurs cartes. Pour les travaux expérimentaux qui n'ont considéré que le système eau-air, les coordonnées utilisées étaient simplement les débits ou les vitesses massiques du gaz et du liquide (Sato *et al.*, 1973a ; Fukushima et Kusaka, 1977a, 1977b ; Matsuura *et al.*, 1979a). Lorsque les liquides

organiques et les mélanges aqueux ont été étudiés, des facteurs tenant compte des propriétés physiques des fluides ont été proposés. Ainsi, Charpentier et Favier (1975) ont suggéré d'utiliser des coordonnées identiques à celles de Baker (1954) qui ont été établies pour des écoulements diphasiques gaz-liquide dans des conduites horizontales, à savoir pour respectivement l'ordonnée et l'abscisse :

$$\frac{G_L}{G_G} \lambda \psi \quad \text{et} \quad \frac{G_G}{\lambda}$$

où G_K est la vitesse massique superficielle du fluide K basée sur la section totale du réacteur. Les paramètres λ et ψ sont définis par les formules suivantes :

$$\lambda = \left(\frac{\rho_G}{\rho_{air}} \frac{\rho_L}{\rho_{eau}} \right)^{\frac{1}{2}} \quad \text{et} \quad \psi = \frac{\sigma_{eau}}{\sigma_L} \left(\frac{\mu_L}{\mu_{eau}} \left(\frac{\rho_{eau}}{\rho_L} \right)^2 \right)^{\frac{1}{3}}$$

Ils tiennent compte de la variation de la tension superficielle σ_L , des masses volumiques ρ_K et des viscosités μ_K des phases fluides par rapport à celles du système eau-air (σ_{eau} , ρ_{eau} , μ_{eau}).

On peut remarquer que dans la carte de Charpentier et Favier, l'ordonnée est adimensionnelle alors que l'abscisse ne l'est pas.

Talmor (1977) a présenté un diagramme des régimes basé sur une ordonnée définie comme le rapport de la vitesse superficielle du gaz sur la vitesse superficielle du liquide, et une abscisse qui représente le rapport de la somme des forces d'inertie et de gravité à la somme des forces visqueuse et interfaciale. Dans la formulation de l'abscisse, l'auteur assimile l'écoulement diphasique à un écoulement d'un pseudo-fluide homogène ayant les propriétés moyennes des deux phases fluides. La fiabilité de cette approche reste douteuse dans la mesure où l'hypothèse d'homogénéité de l'écoulement gaz-liquide est loin être satisfaite dans la réalité.

Par la suite, les coordonnées originales de Baker ont été modifiées par plusieurs chercheurs. Afin de tenir compte de la géométrie du garnissage, Sicardi *et al.* (1979) ont remplacé respectivement les paramètres $(G_L/G_G)\lambda\psi$ et G_G/λ par les coordonnées suivantes :

$$\frac{G_L}{\varepsilon}\psi \quad \text{et} \quad \frac{G_G}{\lambda\varepsilon}$$

où ε est la porosité globale du milieu granulaire.

Cependant, le diagramme obtenu par ces auteurs fait apparaître une large zone de transition entre les régimes dits à faible et à forte interaction. La seule propriété du garnissage qui est prise en compte dans cette carte est la porosité globale du lit ε . Comme cette dernière apparaît dans les deux coordonnées, celles-ci ne sont pas indépendantes. La carte de régimes de Gianetto *et al.* (1978) utilise des coordonnées pratiquement identiques à celles de Baker. La seule différence se situe au niveau de l'abscisse $G_G/(\lambda\varepsilon)$ qui est identique à celle utilisée par Sicardi *et al.* Les coordonnées de Gianetto *et al.* (1978) présentent donc une forme hybride de celles de Baker et de Sicardi *et al.* :

$$\frac{G_L}{G_G}\lambda\psi \quad \text{et} \quad \frac{G_G}{\lambda\varepsilon}$$

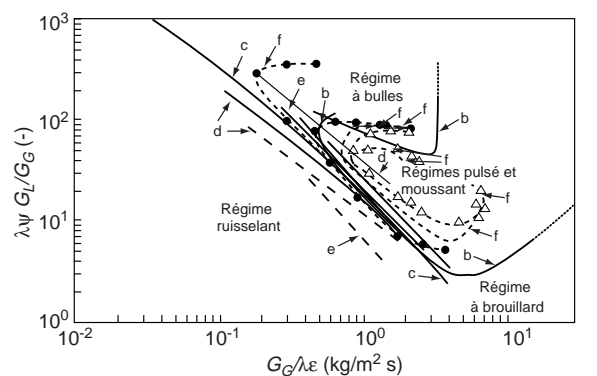
Enfin, Sai et Varma (1988) ont représenté leurs données expérimentales obtenues pour des liquides newtoniens et non newtoniens dans une carte dont l'ordonnée est légèrement modifiée par rapport à celle de Gianetto *et al.* (1978). L'abscisse et l'ordonnée de la carte de Sai et Varma (1988) sont définis respectivement par :

$$\frac{G_L}{G_G}\lambda\psi^{0.5} \quad \text{et} \quad \frac{G_G}{\lambda\varepsilon}$$

Plusieurs sources de données expérimentales obtenues pour des liquides non moussants et moussants (Gianetto *et al.*, 1970 ; Sato *et al.*, 1973a ; Charpentier et Favier, 1975 ; Chou *et al.*, 1977 ; Specchia et Baldi, 1977 et Sai et Varma, 1988) sont représentées dans la carte de Gianetto *et al.* à la

figure 3 extraite de l'article de Sahara et Nigam (1996). Les courbes correspondent aux transitions observées par les différents auteurs. On peut constater que la zone de transition entre le régime ruisselant et les autres régimes est relativement large. Cette remarque reste valable pour toutes les cartes de régimes connues à ce jour. L'explication réside, en partie, dans le caractère subjectif de l'observation visuelle et par le fait que les phénomènes de transitions entre les régimes ne sont pas, en réalité, brusques mais plutôt graduels. Par ailleurs, le mécanisme physique de transition est spécifique à chaque couple de régimes hydrodynamiques de sorte que le choix des coordonnées d'une carte générale qui correspondrait à des zones de transitions étroites et bien définies n'est probablement pas unique. Ainsi, la transition entre les régimes ruisselant et pulsé et celle entre les régimes pulsé et à bulles sont régies par des mécanismes fort différents. On doit noter que les frontières de transitions entre les régimes d'écoulement ne sont pas universelles dans la mesure où elles restent fonction des propriétés physicochimiques des fluides et des caractéristiques géométriques du garnissage.

De plus, les influences significatives d'autres phénomènes tels que la mouillabilité du garnissage (Horowitz *et al.*, 1997) et les effets d'hystérésis de l'angle de contact liquide-solide rendent compliquée l'utilisation des cartes de régimes : les débits de liquide et de gaz à la transition entre les régimes ruisselant et pulsé augmentent avec le caractère hydrophobe de la surface du catalyseur.



- | | |
|-----------------------------------|-------------------------------|
| a - Gianetto <i>et al.</i> (1970) | d - Chou <i>et al.</i> (1977) |
| b - Sato <i>et al.</i> (1973) | e - Specchia et Baldi (1977) |
| c - Charpentier et Favier (1975) | f - Sai et Varma (1988) |

- Systèmes non moussants
 - - - - Systèmes moussants

Figure 3

Carte des régimes hydrodynamiques dans les coordonnées de Gianetto *et al.* (1978) pour les systèmes moussants et non-moussants (Sahara et Nigam, 1996).

Regime flow map of Gianetto et al. (1978) for foaming and nonfoaming systems (from Sahara and Nigam, 1996).

On doit en conclure que les diagrammes des régimes hydrodynamiques ne sont pas universellement applicables et ne peuvent être recommandés d'une manière fiable lors de la conception, l'extrapolation et le fonctionnement des réacteurs à lit fixe industriels. Face à ces limitations, des travaux ont été entamés dans l'objectif de développer un modèle théorique ou des corrélations empiriques qui permettraient de prédire les positions des courbes de transitions entre les régimes.

1.3 Modèles de transitions de régimes hydrodynamiques

Les analyses théoriques sur les transitions de régimes dans un réacteur à lit fixe arrosé sont peu redondantes dans la littérature. La majorité de ces analyses s'est focalisée sur la transition entre les régimes ruisselant et pulsé pour son importance industrielle. En effet, beaucoup de réacteurs à lit fixe commerciaux fonctionnent au voisinage de cette transition (Satterfield, 1975 ; Hofmann, 1978). Les modèles de transitions de régimes sont synthétisés dans le tableau 1.

Sicardi *et al.* (1979) sont les premiers à avoir mis en correspondance l'apparition du régime pulsé avec le phénomène d'obstruction des canaux de passage se produisant à l'échelle du pore. Ils ont déduit une expression qui prédisait une valeur critique constante du taux de rétention de liquide à la transition vers le régime pulsé. Cependant, les résultats expérimentaux ne confirment pas cette prédiction parce que les effets de la géométrie du lit et de la tension superficielle n'ont pas été pris en compte dans leur analyse. Pour prendre en considération ces effets, Sicardi et Hofmann (1980) ont utilisé un modèle de conduite capillaire munie d'un rétrécissement de section. Malheureusement, les effets de la tension superficielle et de la viscosité du liquide n'ont pas fait l'objet d'une analyse systématique.

Sur la base de leurs données expérimentales obtenues pour les systèmes eau/air et des solutions aqueuses de glycérol/air, Blok *et al.* (1983) ont conclu que la transition entre les régimes ruisselant et pulsé se produit pour une valeur constante du nombre de Froude de liquide défini sur la base de la vitesse interstitielle du liquide. Ces auteurs rapportent que cette valeur critique du nombre de Froude est fortement influencée par la viscosité du liquide mais dépend peu de la tension de surface du liquide. Néanmoins, d'autres études expérimentales ont montré que la tension de surface du liquide est un facteur essentiel dans la détermination de la courbe de transition vers le régime pulsé (Chou *et al.*, 1977 ; Tosun, 1984a ; Sai et Varma, 1988). De plus, les expériences de Wammes *et al.* (1990) ont démontré que la valeur de ce nombre de Froude à la transition ruisselant-pulsé n'est pas constante mais augmente avec la vitesse superficielle du gaz. Ces résultats rendent le critère de Blok *et al.* peu fiable pour la détermination de la frontière entre les régimes ruisselant et pulsé. On peut remarquer que ce critère n'est issu en réalité d'aucune base physique mais résulte simplement d'observations phénoménologiques effectuées dans des conditions de fonctionnement bien spécifiques.

Des critères de transition entre les différents régimes (ruisselant, pulsé, bulles et gouttelettes) ont été proposés par Ng (1986). La prédiction de la transition entre les régimes ruisselant et pulsé se base sur une analyse phénoménologique effectuée à l'échelle du pore muni d'un rétrécissement. L'auteur suppose que pour une vitesse interstitielle de gaz suffisamment élevée, le film de liquide obstrue le passage au niveau du rétrécissement en premier lieu. Le modèle de Ng (1986) nécessite la connaissance préalable du taux de rétention de liquide. L'auteur suggère d'évaluer cette grandeur au moyen de la corrélation de Wijffels *et al.* (1974). Un accord quantitatif a été obtenu en comparant les prédictions de ce modèle avec les données de Sato *et al.* (1973a) et celles de Midoux *et al.* (1976) obtenues pour le système eau-air. Cependant, un accord seulement qualitatif a été observé en confrontant les prédictions du modèle avec les données de Chou *et al.* (1977) obtenues en changeant la tension superficielle et la porosité du lit.

Grosser *et al.* (1988) ont prédit la transition entre les régimes ruisselant et pulsé en considérant un modèle hydrodynamique à l'échelle macroscopique du lit. Leur critère est basé sur l'analyse de stabilité linéaire de la solution des équations de bilan de masse et de quantité de mouvement pour le gaz et le liquide. La perte de stabilité de la solution de ces équations est interprétée comme la transition vers le régime pulsé. Ce critère utilise les relations de fermeture de Saez et Carbonell (1985) pour décrire les forces d'interactions entre les phases. Ces relations font apparaître deux paramètres d'ajustement et requièrent la connaissance du taux de rétention de liquide statique. La différence des pressions du gaz et du liquide ($p_G - p_L$) – la pression dite capillaire – est formulée au moyen de la fonction de Leverett (Scheidegger, 1974) amplement utilisée dans l'analyse des écoulements multiphasiques à travers des milieux poreux. Cependant, la validité d'une telle formulation de ($p_G - p_L$) n'a pas été démontrée pour des lits de particules de dimensions typiques à celles employées dans les réacteurs industriels (de l'ordre de 2 à 5 mm). De plus, l'équation de la pression capillaire fait apparaître la perméabilité du milieu granulaire qui reste difficile à évaluer. Les prédictions de ce modèle s'accordent d'une manière satisfaisante avec les données de Chou *et al.* (1977) obtenues pour le système eau-air et pour différentes valeurs de la porosité. Cependant, un désaccord est constaté lorsque la tension de surface du liquide est modifiée. Le modèle de Grosser *et al.* a été repris par Dankworth *et al.* (1990) dans leur analyse de la dynamique de l'écoulement pulsé à travers un milieu granulaire.

Enfin, Holub *et al.* (1993) ont déterminé la transition entre les régimes ruisselant et pulsé en supposant que le mécanisme de transition relève d'une perte de stabilité du film liquide laminaire. Dans leur modèle phénoménologique, le critère de Kapitza (1965) a été utilisé pour décrire les conditions d'apparition d'ondes d'instabilité à la surface du film de liquide. La condition de transition a dû être modifiée d'une façon empirique en se basant sur diverses données expérimentales de la littérature.

TABLEAU 1

Modèles de prédiction de la position de la courbe de transition entre les régimes ruisselant et pulsé dans un réacteur à lit fixe arrosé

Models for the prediction of the trickling-pulsing transition in a trickle-bed reactor

Auteurs	Systèmes étudiés (pression atmosphérique)	Modèles
Sicardi et Hofmann (1980)	Air-eau, eau-lutensol, eau-tulose Anneaux Raschig 10 mm Cylindres 2,7 ; 5 ; 5,4 ; 6 ; 12 mm Billes de verre 2,59 ; 8,01 mm $13 < D/d_p < 30$	$\left(\frac{A_m}{e}\right)_{tr} = 16,2 \left(\frac{\tau_i \varepsilon}{\sigma a_s}\right)^{\frac{1}{2}}$ où A_m est l'amplitude de l'onde de surface et e l'épaisseur moyenne du film
Blok <i>et al.</i> (1983)	Air-eau, eau-acétone, eau-glycérol Éthanol Anneaux Raschig 2,5 ; 4 mm $13 < D/d_p < 80$	$Fr_{Ltr} = \frac{u_{Ltr}^2}{g d_p} = 0,09 ; \quad u_{Ltr} = \frac{j_L}{\varepsilon \beta_t}$
Ng (1986)		$u_{Gr} = \left(\frac{2}{\rho_G} \left(\frac{4\sigma}{d_p} - \rho_L g \frac{d_p}{2} \right) \right)^{\frac{1}{2}}$ $j_G = \varepsilon(1 - \alpha)u_{Gr}, \quad \alpha = 4 \left(\sqrt{1 - \beta_t} - (1 - \beta_t) \right)$
Grosser <i>et al.</i> (1988)		$\begin{cases} \rho_L \varepsilon_L \left(\frac{\partial u_L}{\partial t} + u_L \frac{\partial u_L}{\partial z} \right) + \varepsilon_L \frac{\partial p_L}{\partial z} = \varepsilon_L \rho_L g + F_L \\ \rho_G \varepsilon_G \left(\frac{\partial u_G}{\partial t} + u_G \frac{\partial u_G}{\partial z} \right) + \varepsilon_G \frac{\partial p_G}{\partial z} = \varepsilon_G \rho_G g + F_G \\ p_G - p_L = \left(\frac{\varepsilon}{k} \right)^{\frac{1}{2}} \sigma J(\varepsilon_L), \quad J(\varepsilon_L) = 0,48 + 0,36 \ln \left(\frac{\varepsilon - \varepsilon_L}{\varepsilon_L} \right) \end{cases}$ $F_G = - \left[\frac{180 \mu_G (1 - \varepsilon)^2 \varepsilon^{1,8}}{d_p^2 \varepsilon_G^{2,8}} + \frac{1,8 \rho_G (1 - \varepsilon) \varepsilon^{1,8} u_G }{d_p \varepsilon_G^{1,8}} \right] u_G$ $F_L = - \left(\frac{\varepsilon - \varepsilon_{L,stat}}{\varepsilon_L - \varepsilon_{L,stat}} \right)^{2,9} \left[\frac{180 \mu_L (1 - \varepsilon)^2 \varepsilon_L^2}{d_p^2 \varepsilon^3} + \frac{1,8 \rho_L (1 - \varepsilon) \varepsilon_L^3 u_L }{d_p \varepsilon^3} \right] u_L$
Holub <i>et al.</i> (1993)	Air-eau, air-pétrole Soyabean Billes de verre 3 mm Extrudés 1,88 mm Sphères poreuses 3,175 mm $13,5 < D/d_p < 45$	$\frac{2,9 Re_{Ltr} E_1^{5/11}}{\psi_L^{0,17} Ga_L^{0,41} Ka^{1/11}} \leq 1$ $\psi_L = \frac{1}{\rho_L g} \frac{dp}{dz} + 1$ $2,8 < Ga_L < 6,3 \cdot 10^5, \quad 1 < \psi_L < 55$

Le critère semi-empirique final renferme encore une constante qu'il faut ajuster au moyen de résultats expérimentaux sur des écoulements monophasiques gazeux à travers le lit de particules. Les auteurs ont montré que leur critère semi-empirique prédisait la transition entre les régimes ruisselant et pulsé d'une manière plus précise que celles des modèles de Ng (1986) et de Grosser *et al.* (1988).

Les prédictions des modèles proposés par les différents auteurs sont comparées dans les figures 4 et 5 à des données expérimentales obtenues pour la transition entre les régimes ruisselant et pulsé.

Les données de Chou *et al.* (1977) qui sont reprises dans la figure 4 concernent un liquide dont la tension de surface est faible comparée à celle de l'eau. Par ailleurs, les résultats de mesures de Tosun (1984a) considérés dans la figure 5 sont relatifs à un liquide dont la viscosité dynamique est bien plus élevée que celle de l'eau.

D'une manière générale, aucun modèle n'est complètement satisfaisant. Le modèle de Ng surestime d'une manière significative et quasi systématique les débits de transition. L'accord entre les données et les prédictions des modèles de Ng et de Grosser *et al.* reste de nature qualitative pour des liquides dont les propriétés physiques diffèrent fortement de celles de l'eau. Le modèle semi-empirique de Holub *et al.* ne prédit même pas la tendance observée expérimentalement à savoir une vitesse massique de gaz G_G qui décroît lorsque G_L augmente. Ce fait est attribué à la correction empirique apportée par les auteurs à la formulation originale déduite du critère de Kapitza afin d'optimiser l'erreur de prédiction. La

formulation originale reproduit en effet correctement la tendance expérimentale. Ces modèles doivent donc être utilisés avec précaution surtout lorsque des fluides industriels, tels que des fractions pétrolières, sont considérés.

Il ressort de cette analyse qu'il existe jusqu'à présent deux types d'approches pour modéliser la transition entre les régimes ruisselant et pulsé. La première se base sur une interprétation du phénomène d'occurrence de pulsations à l'échelle du pore : l'apparition des bouchons de liquide est attribuée à une obstruction des zones rétrécies des canaux de passage interstitiels par le film de liquide (Sicardi *et al.*, 1979 ; Ng, 1986). La seconde approche est fondée sur une interprétation du phénomène de pulsations à l'échelle macroscopique du milieu granulaire : la transition vers l'écoulement pulsé est alors attribuée à une instabilité de la surface du film de liquide causée par la prédominance des forces d'inertie des phases fluides comparées aux forces de tension de surface stabilisantes localisées à l'interface gaz-liquide (Grosser *et al.*, 1988 ; Holub *et al.*, 1993). L'hypothèse de l'obstruction des pores ne permet pas d'expliquer pourquoi les obstructions microscopiques des nombreux canaux de passage devraient se synchroniser pour générer un comportement hétérogène de l'écoulement pulsé à l'échelle macroscopique.

De ce fait, l'hypothèse de l'instabilité macroscopique du film de liquide semble la plus plausible. C'est la raison pour laquelle la seconde approche permet jusqu'à présent de prédire la frontière entre les régimes ruisselant et pulsé avec la meilleure précision.

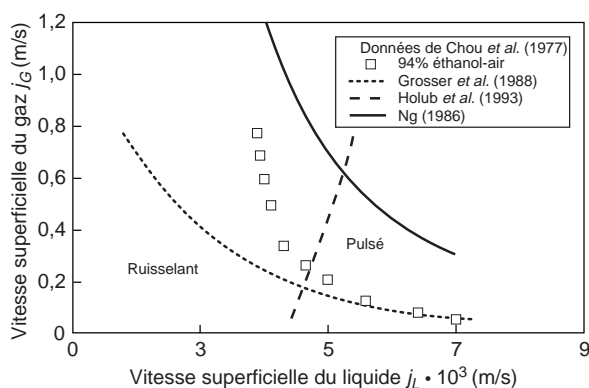


Figure 4

Comparaison des prédictions des modèles de la littérature avec les données expérimentales obtenues à la pression atmosphérique par Chou *et al.* (1977) sur la position de la courbe de transition entre les régimes ruisselant et pulsé (système eau + 94 % éthanol-air, billes de verre $d_p = 2,9$ mm et porosité $\varepsilon = 0,39$, $E_1 = 180$ et $E_2 = 1,8$).

Comparison of the predictions given from the existing models with experimental data obtained by Chou et al. (1977) for the pulsing-trickling transition (water + 94% ethanol-air system, glass beads $d_p = 2.9$ mm and bed porosity $\varepsilon = 0.39$, $E_1 = 180$ and $E_2 = 1.8$).

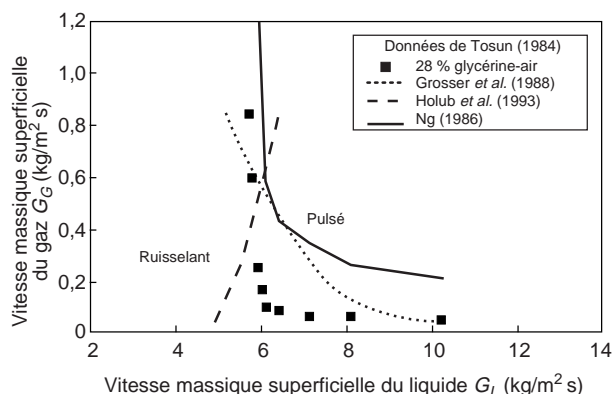


Figure 5

Comparaison des prédictions des modèles de la littérature avec les données expérimentales obtenues à la pression atmosphérique par Tosun (1984a) sur la position de la courbe de transition entre les régimes ruisselant et pulsé (système eau + 28 % glycérine-air, billes de verre $d_p = 1,9$ mm et porosité $\varepsilon = 0,344$, $E_1 = 150$ et $E_2 = 1,8$).

Comparison of the predictions given from the existing models with experimental data obtained by Tosun (1984a) for the pulsing-trickling transition (water+28% glycerine-air system, glass beads $d_p = 1.9$ mm and bed porosity $\varepsilon = 0.344$, $E_1 = 150$ and $E_2 = 1.8$).

1.4 Influence de la pression de fonctionnement du réacteur sur les transitions de régimes

Les cartes de régimes d'écoulement gaz-liquide et les modèles de transitions ont été développés et validés sur la base de données expérimentales obtenues à la pression atmosphérique et à la température ambiante. Or, les réacteurs à lit fixe commerciaux fonctionnent à des niveaux de pression beaucoup plus élevés de manière à augmenter la solubilité du réactif gazeux et/ou à améliorer le transfert de chaleur. La validité des cartes de régimes d'écoulement dans les conditions de pression élevée est douteuse car les frontières de transitions peuvent changer considérablement en fonction de la pression de fonctionnement. Par exemple, la transition du régime ruisselant au régime pulsé est conditionnée par la vitesse interstitielle du gaz. Une plus grande pression correspond à une masse volumique du gaz plus élevée. Par conséquent, un débit massique de gaz plus important est nécessaire pour que la vitesse interstitielle du gaz atteigne la valeur critique occasionnant la transition. Des études ont été entamées par certains auteurs afin d'analyser les effets de la pression sur la position de la frontière de transition entre les régimes ruisselant et pulsé (Hasseni *et al.*, 1987a, b ; Wammes *et al.*, 1990, 1991b ; Wammes et Westerterp, 1990, 1991 ; Larachi, 1991 ; Larachi *et al.*, 1993).

L'étude du comportement hydrodynamique à haute pression du réacteur à lit fixe arrosé a été entamée par Hasseni *et al.* (1987a, 1987b). Ces auteurs ont réalisé des expériences pour des valeurs de la pression de fonctionnement variant dans l'intervalle 0,1-10 MPa. Le gaz utilisé est l'azote et des liquides de diverses natures ont été testés (eau, gazole, cyclohexane, éthylèneglycol). Le garnissage est constitué de billes de verre de 1,4, 2 ou 3 mm de diamètre dans une colonne de 1 m de hauteur et 23 mm de diamètre. La comparaison de leurs résultats expérimentaux avec le diagramme de Charpentier et Favier (1975) a montré que ce dernier convenait à la prédiction de la ligne de transition entre les régimes ruisselant et pulsé à basse pression. Cependant, cette ligne est systématiquement décalée vers les plus grandes valeurs de débit massique de gaz lorsque la pression augmente. Hasseni *et al.* (1987a) ont aussi comparé les prédictions du modèle de Ng (1986) avec leurs résultats expérimentaux. Il s'est avéré que l'accord est acceptable pour le système eau-azote même aux pressions élevées. Malheureusement, pour le système éthylène glycol-azote, la valeur du débit de liquide à la transition entre les régimes ruisselant et pulsé calculée par ce modèle est de l'ordre de 5 à 10 fois plus faible que la valeur expérimentale rapportée par Hasseni *et al.* (1987a). Les auteurs ont conclu que le modèle de Ng (1986) ne prend pas en considération d'une manière satisfaisante l'influence de la viscosité dynamique du liquide sur le phénomène de transition vers le régime pulsé. En réalisant une étude de sensibilité des prédictions du modèle de Ng (1986) vis-à-vis de la pression

de fonctionnement, de la tension de surface et du diamètre des particules, Hasseni *et al.* (1987a) sont arrivés aux conclusions suivantes :

- un débit massique de liquide donné, le débit massique de gaz correspondant à la transition entre les régimes ruisselant et pulsé augmente avec la pression de fonctionnement ;
- pour une pression de fonctionnement fixée, le débit massique de gaz ou de liquide correspondant à la transition croît avec le diamètre des particules ;
- pour un débit massique de liquide et une pression de fonctionnement donnés, le débit massique de gaz correspondant à la transition augmente avec la tension de surface.

L'effet de la pression dans l'intervalle 0,2-6 MPa sur la position de la frontière entre les régimes ruisselant et pulsé a été examiné par Wammes *et al.* (1990, 1991b) et Wammes et Westerterp (1990, 1991) qui ont utilisé des systèmes aqueux (eau-azote, eau-hélium) et aqueux visqueux (eau + 40 % éthylèneglycol-azote). Le lit de 2,62 m de hauteur et 51 mm de diamètre est constitué de billes de verre de 3 mm de diamètre.

Un exemple typique de résultats expérimentaux obtenus par Wammes *et al.* (1991b) pour les systèmes eau-hélium et eau-azote est représenté sur la figure 6. Ces résultats montrent que pour une valeur constante de la vitesse superficielle de gaz, la transition entre les régimes ruisselant et pulsé a lieu à des vitesses superficielles de liquide plus élevées à haute pression qu'à basse pression. La même tendance est observée lorsque la masse molaire du gaz est augmentée pour une valeur fixée de la pression de fonctionnement. Cet effet s'explique par l'augmentation de la masse volumique du gaz qui occasionne une croissance du gradient de pression. Cette dernière induit une diminution du taux de rétention de liquide et donc de l'épaisseur moyenne du film de liquide. Par conséquent, le débit de liquide doit être plus élevé pour produire l'obstruction du passage des fluides à l'échelle du pore et l'apparition du phénomène de pulsation au sein du lit.

Wammes *et al.* (1990) ont constaté que les modèles et les diagrammes de régimes d'écoulement établis dans les conditions ambiantes conviennent raisonnablement à la description de leurs données expérimentales obtenues à la basse pression de 0,2 MPa. Cependant, cet accord n'est plus observé aux pressions élevées sauf pour le système eau-azote pour lequel leurs données expérimentales sur la transition entre les régimes ruisselant et pulsé étaient prédites avec une raisonnable précision par la carte de Talmor (1977). Pour le modèle de Ng (1986), Wammes *et al.* (1990) signalent un désaccord semblable à celui trouvé par Hasseni *et al.* (1987a). Les prédictions fournies par ce modèle sont comparées sur la figure 6 aux données expérimentales sur la transition entre les régimes ruisselant et pulsé obtenues à des pressions élevées par Wammes *et al.* (1991b) — le taux de rétention de liquide utilisé dans le modèle est fixé à la valeur expérimentale.

Bien que les influences de la pression et de la masse molaire du gaz soient correctement prises en compte par le modèle de Ng, les valeurs calculées de la vitesse superficielle du gaz à la transition surestiment les résultats de mesures d'un facteur pouvant dépasser 4. Sur la base de leurs données expérimentales, Wammes *et al.* (1990) ont proposé de déterminer la vitesse superficielle du gaz à la transition $j_{G,tr}$ au moyen de la corrélation empirique suivante :

$$j_{G,tr}^{0,26} = \frac{c}{\beta_{t,tr} \rho_G^{0,04}} \quad (0,2 \text{ MPa} < p < 20 \text{ MPa})$$

dans laquelle $c = 0,27$ pour le système eau-azote, $0,32$ pour le système 40 % éthylèneglycol + eau-azote, et $\beta_{t,tr}$ est la saturation totale de liquide à la transition.

Le paramètre c persistant dans cette expression n'a été déterminé que pour deux liquides. D'autres données sont donc nécessaires pour pouvoir corréler le paramètre c en fonction des propriétés physiques du liquide et étendre ainsi le domaine de validité de cette corrélation. Le principal inconvénient de la corrélation empirique de Wammes *et al.* (1990) réside dans le fait qu'elle nécessite, tout comme le modèle de Ng (1986), la connaissance préalable du taux de rétention de liquide à la transition vers le régime pulsé.

Les positions de la frontière entre les régimes ruisselant et pulsé calculées par le modèle de Grosser *et al.* (1988) et par la corrélation semi-empirique de Holub *et al.* (1993) sont

comparées respectivement dans les figures 7 et 8 avec des données expérimentales obtenues à des pressions élevées par Wammes *et al.* (1991b) pour les systèmes eau-hélium et eau-azote. Pour une masse volumique de gaz relativement faible (1,5 MPa-He), les prédictions fournies par ces modèles sont en accord raisonnable avec les résultats de mesures. Cependant, lorsque la masse volumique du gaz augmente (via la pression ou/et la masse molaire, 7,0 MPa-He et 1,5 MPa-N₂), un désaccord flagrant est observé entre ces modèles et les expériences. De plus, la tendance prédite par le modèle de Grosser *et al.* quant à l'influence de la pression et de la masse molaire du gaz sur la position de la frontière entre les régimes ruisselant et pulsé est en contradiction avec les résultats expérimentaux. Les mêmes remarques peuvent être faites concernant la comparaison des prédictions du modèle de Grosser *et al.* avec les données obtenues par Wammes *et al.* (1990, 1991b) pour les systèmes 40 % ETG-hélium et 40 % ETG-azote. Ce désaccord indique que l'expression de la pression capillaire utilisant la fonction de Leverett dans le modèle de Grosser *et al.* ne peut s'appliquer qu'à basse pression. Ce fait limite considérablement les potentialités de ce modèle à prédire la position de la frontière entre les régimes ruisselant et pulsé dans les réacteurs commerciaux. Par ailleurs, l'utilisation de la corrélation de Holub *et al.* dans les applications industrielles peut occasionner des erreurs de prédiction importantes.

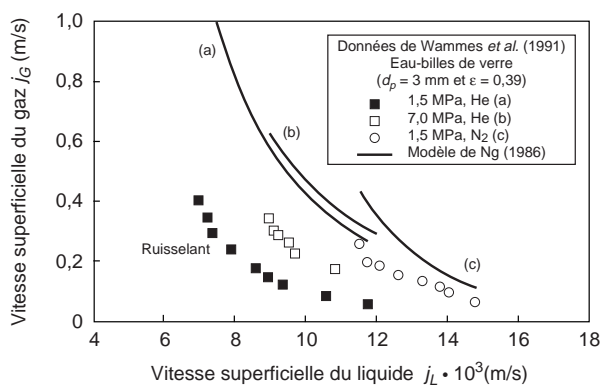


Figure 6

Comparaison des prédictions du modèle de Ng (1986) avec les données expérimentales obtenues à hautes pressions par Wammes *et al.* (1991b) sur la position de la courbe de transition entre les régimes ruisselant et pulsé (systèmes eau-hélium et eau-azote, billes de verre $d_p = 3$ mm et porosité $\varepsilon = 0,39$).

Comparison of the predictions given from the model of Ng (1986) with the experimental data obtained at elevated pressures by Wammes et al. (1991b) for the trickling-pulsing transition (water-helium and water-nitrogen systems, glass beads $d_p = 3$ mm and bed porosity $\varepsilon = 0.39$).

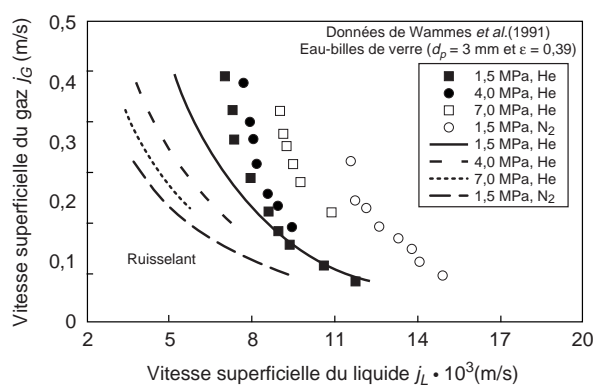


Figure 7

Comparaison des prédictions du modèle de Grosser *et al.* (1988) avec les données expérimentales obtenues à hautes pressions par Wammes *et al.* (1991b) sur la position de la courbe de transition entre les régimes ruisselant et pulsé (systèmes eau-hélium et eau-azote, billes de verre $d_p = 3$ mm et porosité $\varepsilon = 0,39$).

Comparison of the predictions given from the model of Grosser et al. (1988) with the experimental data obtained at elevated pressures by Wammes et al. (1991b) for the trickling-pulsing transition (water-helium and water-nitrogen systems, glass beads $d_p = 3$ mm and bed porosity $\varepsilon = 0.39$).

Larachi (1991) a analysé l'évolution de la position de la frontière entre les régimes mousseux et mousseux-pulsé en fonction de la pression de fonctionnement dans le cas du système inhibiteur de coalescence eau + 1 % éthanol-azote entre 0,2 et 5,1 MPa. L'auteur a constaté que la vitesse superficielle de gaz correspondant à la transition mousseux/mousseux-pulsé décroît quand la pression de fonctionnement augmente. Cet effet de la pression montre de nouveau qu'il est dangereux d'extrapoler les résultats de position des frontières de régimes obtenus à partir d'un essai réalisé à la pression atmosphérique. En comparant les prédictions des modèles de Ng (1986) et de Grosser *et al.* (1988) avec des résultats expérimentaux de Hasseni *et al.* (1987a) et Wammes *et al.* (1990) obtenus sur la transition ruisselant-pulsé pour des systèmes non moussants, Larachi (1991) a rapporté un désaccord important dans les conditions de hautes pressions. Faute d'accord entre modèles et expériences, Larachi *et al.* (1993) proposent une modification empirique du diagramme de Charpentier et Favier pour prendre en compte l'effet de la pression de fonctionnement sur la position de la frontière entre les régimes ruisselant et pulsé pour les systèmes non moussants. La corrélation empirique résultant de cette modification s'écrit sous la forme suivante :

$$\frac{G_{L,tr} \lambda \psi \phi}{G_{G,tr}} = \left(\frac{G_{G,tr}}{\lambda} \right)^{-1,25} \quad (0,1 \text{ MPa} < p < 10 \text{ MPa})$$

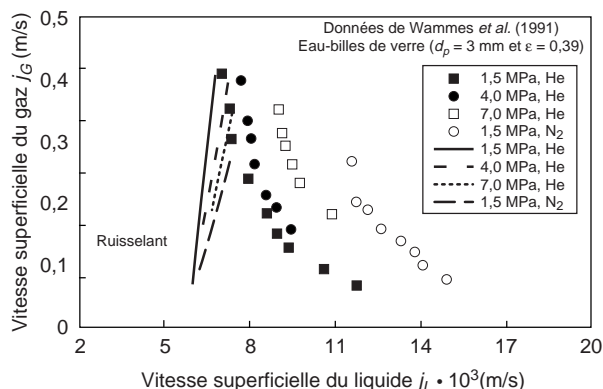


Figure 8

Comparaison des prédictions du modèle semi-empirique de Holub *et al.* (1993) avec les données expérimentales obtenues à hautes pressions par Wammes *et al.* (1991b) sur la position de la courbe de transition entre les régimes ruisselant et pulsé (systèmes eau-hélium et eau-azote, billes de verre $d_p = 3 \text{ mm}$ et porosité $\epsilon = 0,39$).

Comparison of the predictions given from the semi-empirical model of Holub *et al.* (1993) with the experimental data obtained at elevated pressures by Wammes *et al.* (1991b) for the trickling-pulsing transition (water-helium and water-nitrogen systems, glass beads $d_p = 3 \text{ mm}$ and bed porosity $\epsilon = 0,39$).

où $G_{K,tr}$ est la vitesse massique superficielle du fluide K à la transition et le paramètre

$$\phi = \frac{1}{4,76 + 0,5 \frac{\rho_G}{\rho_{air}}}$$

est introduit pour tenir compte de l'influence de la pression de fonctionnement.

Dans la figure 9, les prédictions au moyen de cette corrélation de la vitesse massique superficielle de liquide à la transition entre les régimes ruisselant et pulsé sont comparées à diverses sources de données expérimentales publiées dans la littérature (environ 400 points expérimentaux). Les systèmes gaz-liquide-solide ainsi que la pression de fonctionnement caractérisant cet ensemble de données expérimentales sont spécifiés dans le tableau 2.

La corrélation de Larachi *et al.* (1993) prédit avec une précision raisonnable le débit de liquide à la transition bien que la dispersion des points autour de la ligne diagonale reste importante : l'erreur relative moyenne de prédiction de $G_{L,tr}$ est de l'ordre de 25 %. Il s'avère que la précision de cette

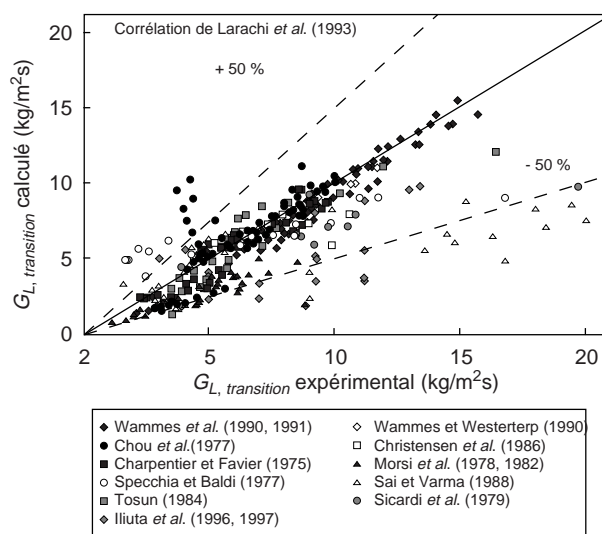


Figure 9

Comparaison des valeurs du débit massique de liquide à la transition ruisselant-pulsé calculées par la corrélation de Larachi *et al.* (1993) avec les résultats expérimentaux des différentes sources de la littérature — près de 400 points de mesures (tableau 2).

Parity plot of the values of liquid superficial mass velocity at the trickling-pulsing transition calculated from the empirical correlation of Larachi *et al.* (1993) versus the experimental values—number of experimental points: around 400 (table 2).

TABLEAU 2

Ensemble de données expérimentales de la littérature concernant la transition entre les régimes ruisselant et pulsé utilisé pour la comparaison présentée sur la figure 9

Literature data of transition between trickle and pulse regimes for the parity plot presented in Figure 9

Référence	Systèmes	Milieus granulaires	Pression de fonctionnement
Charpentier et Favier (1975)	Eau, cyclohexane, gazoline, éther de pétrole, Air, azote, hélium, dioxyde de carbone	Sphères 3 mm, $\varepsilon = 0,39$ Cylindres 2.35 mm, $\varepsilon = 0,39$ Cylindres 1.84 mm, $\varepsilon = 0,37$	~ pression atm.
Specchia et Baldi (1977)	Eau, eau + 9 % glycérol, eau + 29 % glycérol, eau + 8 ppm surfactant Air	Billes de verre 6 mm, $\varepsilon = 0,4$ Cylindres 2,7 mm, $\varepsilon = 0,38$ Cylindres 5,4 mm, $\varepsilon = 0,37$	~ pression atm.
Chou <i>et al.</i> (1977)	Eau, eau + 0,1% ou 94 % éthanol, eau + 1 ou 2,5 ppm surfactant Air	Billes de verre 2,9 mm, $\varepsilon = 0,39$, $\varepsilon = 0,366$	~ pression atm.
Sicardi <i>et al.</i> (1979)	Eau-air	Cylindres 6 mm, $\varepsilon = 0,41$ Cylindres 5 mm, $\varepsilon = 0,41$	~ pression atm.
Morsi <i>et al.</i> (1978, 1982)	Cyclohexane, éthylèneglycol, méthanol, gazole désulfuré, kérosène, polyéthylèneglycol Air	Sphères poreuses 2,4 mm, $\varepsilon = 0,385$ Cylindres 1,36 mm, $\varepsilon = 0,386$	~ pression atm.
Tosun (1984a)	Eau, eau + 28 % ou 50% glycérine, eau + 80% méthanol, solution ternaire Air, hélium	Billes de verre 1,9 mm, $\varepsilon = 0,344$	~ pression atm.
Christensen <i>et al.</i> (1986)	Eau-air	Billes de verre 3 mm, $\varepsilon = 0,368$	~ pression atm.
Sai et Varma (1988)	Eau, kérosène, <i>n</i> -hexane 10-20-40 % glycérine Air	Anneaux Raschig 3,14 mm, $\varepsilon = 0,72$ Cylindres 5,27 mm, $\varepsilon = 0,385$ Sphères 4,32 mm, $\varepsilon = 0,41$ Sphères 2,39 mm, $\varepsilon = 0,39$	~ pression atm.
Wammes <i>et al.</i> (1990, 1991b), Wammes et Westerterp (1990)	Eau, 40 % éthylèneglycol, éthanol Azote, hélium	Billes de verre 3 mm, $\varepsilon = 0,39$ Cylindres poreux 3,2 mm, $\varepsilon = 0,44$	Pressions élevées : $0,1 \text{ MPa} < p < 7,5 \text{ MPa}$
Iliuta <i>et al.</i> (1996), Iliuta et Thyriou (1997)	Eau, 0,1-0,5-1 % CMC Air	Billes de verre 3 mm, $\varepsilon = 0,37$ Sphères poreuses 3,3 mm, $\varepsilon = 0,356$	~ pression atm.

corrélation est meilleure pour le mélange eau-azote et les systèmes aqueux. Par contre, des écarts significatifs entre les valeurs prédites et mesurées de $G_{L,lr}$ sont observés pour les systèmes organiques, en particulier dans les conditions de hautes pressions. Dès lors, il est nécessaire de disposer de plus de résultats expérimentaux à hautes pressions et pour différents systèmes organiques ainsi que des données sur l'influence de la température afin de pouvoir valider d'une manière plus générale cette corrélation.

1.5 Quelques perspectives

On peut remarquer que beaucoup de cartes de régimes d'écoulement gaz-liquide dans les réacteurs à lit fixe ont été établies sur la base d'expériences réalisées dans les conditions atmosphériques. Souvent, les auteurs ont utilisé le système eau-air et un lit de particules inertes. Par conséquent, l'utilisation de ces cartes de régimes lors de la conception et du fonctionnement à hautes pressions et à hautes températures des réacteurs à lit fixe industriels peut conduire à des erreurs de prédiction importantes. Trois études seulement (Hasseni *et al.*, 1987a, 1987b ; Wammes *et al.*, 1990, 1991b, Larachi, 1991) ont porté sur les transitions de régimes d'écoulement (surtout la transition entre les régimes ruisselant et pulsé) dans les conditions de hautes pressions mais les particules qui ont été utilisées sont restées inertes et non poreuses (billes de verre, par exemple). Ces travaux ont souligné l'incapacité de la part des modèles de la littérature à prédire avec une précision raisonnable la position de la frontière entre les régimes ruisselant et pulsé dans les conditions de hautes pressions. Face à l'absence de modèle satisfaisant, seule une étude (Larachi *et al.*, 1993) a conduit à une modification empirique du diagramme de Charpentier pour tenir compte de l'effet de la pression de fonctionnement. Dès lors, des études supplémentaires ont besoin d'être réalisées dans les conditions de pressions et/ou de températures élevées avec des systèmes organiques et des particules catalytiques poreuses. Les résultats de ces travaux de recherches sont nécessaires aussi bien pour l'extrapolation aux réacteurs industriels que pour la validation de modèles physiques. Enfin, l'influence de la pression de fonctionnement sur la position de la courbe de transition entre les régimes pulsé et à bulles et sur celle de la courbe de transition entre les régimes pulsé et à brouillard n'a fait l'objet encore d'aucune étude systématique.

2 PERTE DE PRESSION DE L'ÉCOULEMENT GAZ-LIQUIDE DESCENDANT À TRAVERS UN RÉACTEUR À LIT FIXE

La perte de pression est un paramètre de base puisqu'elle conditionne l'énergie que le milieu extérieur doit dépenser pour faire circuler les phases gazeuse et liquide à travers le lit fixe de particules. Elle est donc une grandeur de base pour la

conception, l'extrapolation et le fonctionnement des réacteurs à lit fixe.

2.1 Analyses expérimentales faites sur les réacteurs fonctionnant à la pression atmosphérique

En analysant les résultats expérimentaux de la littérature obtenus sur des réacteurs à lit fixe arrosé fonctionnant à la pression atmosphérique, on peut conclure que la perte de pression est influencée par des paramètres de diverses natures. L'influence de ces paramètres est synthétisée dans ce paragraphe.

Influence des débits massiques des phases fluides

Dans le domaine des faibles débits massiques (régime visqueux), la perte de pression de l'écoulement diphasique croît linéairement avec le débit d'une phase fluide. Pour des plus grands débits massiques (régime inertiel), la perte de pression augmente comme le carré du débit d'une phase fluide. En général, la perte de pression croît plus rapidement avec le débit de liquide qu'avec le débit de gaz.

Influence du régime hydrodynamique d'écoulement

Aucun changement brusque de comportement de la perte de pression n'est généralement observé lors de la transition d'un régime d'écoulement à un autre. Néanmoins, la perte de pression augmente plus rapidement dans le régime ruisselant en fonction des vitesses superficielles des fluides qu'en régime pulsé ou à bulles (Rao *et al.*, 1983 ; Rao et Drinkenburg, 1985 ; Sai et Varma, 1987). Cette observation montre qu'il est pratiquement impossible d'établir un modèle ou une corrélation unique qui soit valable pour tous les régimes d'écoulement dans la mesure où les mécanismes d'interaction entre les phases fluides dépendent fortement de la structure géométrique des interfaces.

Influence du sens de l'écoulement

En général, les auteurs signalent qu'il existe peu de différence entre la valeur de la perte de pression pour un écoulement gaz-liquide ascendant et celle pour un écoulement gaz-liquide descendant à travers un réacteur à lit fixe dans les régimes pulsé et à bulles (Ellman, 1988 ; Yang *et al.*, 1992). On peut penser que dans ces régimes l'action de la gravité est négligeable comparée aux effets d'inertie des fluides. Cependant, Specchia *et al.* (1974) ont noté que la perte de pression est légèrement plus élevée en écoulement vers le haut qu'en écoulement vers le bas. Larachi (1993) a signalé la tendance inverse. L'influence du sens de l'écoulement sur la perte de pression reste donc à être éclaircie.

Influence de la viscosité dynamique du liquide

Pour des mêmes débits massiques de gaz et de liquide, la perte de pression croît avec la viscosité dynamique du liquide (Morsi *et al.*, 1982 ; Sai et Varma, 1987). Une augmentation de la viscosité du liquide engendre une plus importante dissipation d'énergie mécanique due aux travaux des forces

de cisaillement localisées aux interfaces liquide-solide et gaz-liquide. Cette observation confirme que ces forces de cisaillement interfaciales ne doivent pas être sous-estimées par rapport aux forces d'inertie et de gravité.

Influence de la tension de surface

La perte de pression augmente avec la tension de surface du liquide.

Influence de la viscosité dynamique du gaz

La viscosité dynamique du gaz est quasi indépendante de la pression et augmente légèrement avec la température. La viscosité de l'hélium ou de l'azote, par exemple, augmente de moins de 50 % quand la pression croît de 0,1 à 8 MPa. Il est donc difficile de tirer une conclusion quant à l'influence de cette grandeur sur la perte de pression.

Influence du phénomène d'inhibition de coalescence

Midoux *et al.* (1976) et Larachi *et al.* (1991a) ont montré que la perte de pression est beaucoup plus élevée avec les systèmes inhibiteurs de coalescence (systèmes moussants) qu'avec les systèmes coalescents (systèmes non moussants). Le phénomène d'inhibition de coalescence est complexe et ne peut être décrit uniquement par la tension de surface du liquide. Il est probable que ce phénomène soit lié au gradient de tension de surface à l'interface gaz-liquide dû aux traces d'impuretés.

Influence des caractéristiques géométriques du lit

Il semblerait que la texture du lit et la forme géométrique des particules aient peu d'influence sur la perte de pression. Par contre, cette dernière dépend fortement de la porosité globale du milieu granulaire bien que ce paramètre ne varie que sur un petit intervalle pour les réacteurs à lit fixe arrosé (entre 0,35 et 0,45). Ainsi, un chargement dense du réacteur au moyen d'une orientation préférentielle des grains génère une perte de pression plus importante à cause de la valeur relativement faible de la porosité du lit (Tukac et Hanika, 1992). La plupart des auteurs ont noté que la perte de pression croît lorsque le diamètre équivalent des particules diminue. En effet, comme la porosité change peu, lorsque la taille des particules est réduite, l'aire interfaciale augmente, le passage offert au liquide devient de plus en plus tortueux et la rétention de liquide est plus importante. Dès lors, les forces de cisaillement s'exerçant sur le liquide s'intensifient et, comme le passage offert au gaz a tendance à se rétrécir, le flux de quantité de mouvement de la phase gazeuse devient plus important.

Influence du phénomène d'hystérésis de la mouillabilité du catalyseur

Certains chercheurs se sont intéressés à l'influence du phénomène d'hystérésis de la mouillabilité du catalyseur (c'est-à-dire l'hystérésis de l'angle de contact liquide-solide) sur les caractéristiques hydrodynamiques des réacteurs à lit fixe arrosé. Kan et Greenfield (1978) ont rapporté des caractéristiques différentes de gradient de pression $\Delta p/\Delta z$ en fonction

du débit massique gazeux G_G , à débit massique de liquide G_L constant, pour différentes valeurs maximum du débit de gaz atteintes pendant les procédures de drainage et d'imbibition du réacteur. La perte de pression mesurée pendant la croissance du débit de gaz est plus élevée que celle mesurée durant la décroissance de ce débit. Levec *et al.* (1986) et Christensen *et al.* (1986) ont également noté que la perte de pression était plus faible pendant la procédure d'accroissement du débit de liquide que pendant la procédure d'abaissement de ce débit. Ces auteurs ont mis en correspondance ces observations avec l'effet qu'aurait le phénomène d'hystérésis de la mouillabilité sur le taux de rétention de liquide.

Ces effets ont été aussi rapportés par Lazzaroni *et al.* (1989) dans son étude hydrodynamique réalisée dans le régime ruisselant.

Par contre, Wammes *et al.* (1991b) et Larachi (1991) n'ont observé aucun effet d'hystérésis sur la perte de pression et le taux de rétention de liquide. Ce fait signifie, selon ces auteurs, que les paramètres hydrodynamiques du réacteur fonctionnant dans des conditions données ne dépendent pas du mode opératoire suivi pour ajuster ces conditions. C'est seulement pour des solutions aqueuses d'amines que Wammes *et al.* (1991b) ont rapporté un effet d'hystérésis sur la perte de pression et l'aire spécifique interfaciale, qu'ils ont expliqué par le fait que l'introduction de substances anti-mousses, telles que les solutions d'amines, pouvait dégrader la mouillabilité des billes de verre utilisées dans leur travail. Ainsi, les facteurs qui favorisent un mouillage optimal des particules solides auront tendance à rendre le phénomène d'hystérésis peu probable. On peut donc penser que les imperfections microscopiques de la surface du catalyseur accentueront l'hystérésis de la mouillabilité qui est responsable à son tour du phénomène d'hystérésis observé pour les paramètres hydrodynamiques du réacteur.

2.2 Modèles et corrélations de la perte de pression développés à la pression atmosphérique

Les travaux expérimentaux effectués sur des réacteurs fonctionnant à la pression atmosphérique ont conduit au développement de nombreux modèles et corrélations de la perte de pression (Satterfield, 1975 ; Hofmann, 1977 ; Herkowitz, 1983 ; Saroha et Nigam, 1996). Dans le tableau 3, on a regroupé les plus récents modèles et corrélations de la perte de pression développés dans les conditions de pression atmosphérique. On peut distinguer trois groupes de modèles et corrélations de la perte de pression d'un écoulement gaz-liquide à travers un réacteur à lit fixe arrosé : les corrélations basées sur l'approche de Lockhart-Martinelli ; les corrélations basées sur les variables de fonctionnement du réacteur et les caractéristiques du lit ; les modèles semi-empiriques basés sur l'équation d'Ergun (1952).

TABLEAU 3

Modèles et corrélations de la perte de pression d'un écoulement gaz-liquide descendant à travers un réacteur à lit fixe arrosé (pression atmosphérique)

Models and correlations for the prediction of pressure drop in the cocurrent downward flow through a fixed bed reactor: atmospheric pressure

Auteurs	Systèmes étudiés (pression atmosphérique)	Modèles ou corrélations
Rao <i>et al.</i> (1983)	Air-eau Cylindres, sphères, anneaux Raschig, selles de Berl $6,9 < D/d_p < 29,4$	$\phi_L = 1 + \frac{0,99}{X} + \frac{1,14}{\sqrt{X}}$
Tosun (1984b)	Gaz: air ou hélium Liquides: eau, glycérine ou méthanol + eau, glycérine + éthanol + eau Billes de verre $D/d_p = 26,8$	$\phi_L = 1 + \frac{1}{X} + \frac{1,424}{X^{0,576}}$
Ratnam <i>et al.</i> (1993)	Air-eau, air-eau + CMC (0,2 ; 0,5 ; 0,8 et 1%) Sphères, cylindres, anneaux Raschig $7,9 < D/d_p < 29,4$	$\phi_G = (1 + X^{2/m})^{m/2}$ $m = a \cdot (g d_p \mu_L^2 / \sigma^2)^\delta + b \cdot \varepsilon$ avec $a = 1,55$; $b = 2,1$ et $d = -0,05$
Saez et Carbonell (1985)	Air-eau Sphères, cylindres, anneaux Raschig $9 < D/d_p < 32$	$\left\{ \begin{array}{l} \Psi_G = \frac{\Delta p / \Delta z}{\rho_G g} + 1 = \frac{1}{(1 - \beta_t)^{4,8}} \left(\frac{180 Re_G}{Ga_G} + \frac{1,8 Re_G^2}{Ga_G} \right) \\ \frac{1}{\delta_L^{2,43}} \left(\frac{180 Re_L}{Ga_L} + \frac{1,8 Re_L^2}{Ga_L} \right) - \frac{\rho_G / \rho_L}{(1 - \beta_t)^{4,8}} \left(\frac{180 Re_G}{Ga_G} + \frac{1,8 Re_G^2}{Ga_G} \right) = 1 \\ \delta_L = \frac{\varepsilon_L - \varepsilon_{L,stat}}{\varepsilon - \varepsilon_{L,stat}}, \quad \beta_t = \frac{\varepsilon_L}{\varepsilon} \end{array} \right.$
Sai et Varma (1987)	Air-eau, glycérine, kérosène, <i>n</i> -hexane, CMC + eau Sphères, cylindres, anneaux Raschig $4,7 < D/d_p < 29,4$	$F = a \left(\frac{Re_G}{Re_L} \right)^b \left(\frac{\mu_w}{\mu_L} \right)^c \left(\frac{\sigma_w}{\sigma_L} \right)^{0,05} \left(\frac{\rho_L}{\rho_w} \right)^{1,3} = f Re_L^{0,6} / \eta^{0,75}$ $\eta = (1 - \varepsilon)^2 / \varepsilon^3, \quad f = 2(\Delta p / \Delta z) \cdot d_p / (\rho_L j_L^2)$ $a = 1320, \quad b = 1,0 ; \quad c = 1,4$ (ruisselant) $a = 1950, \quad b = 0,7 ; \quad c = 1,1$ (puls.) $a = 2035, \quad b = 0,4 ; \quad c = 0,8$ (bulles)
Holub <i>et al.</i> (1992, 1993)	Air-eau, pétrole Soyabean Billes de verre, extrudés Sphères poreuses $12 < D/d_p < 51$	$\left\{ \begin{array}{l} \Psi_L = \frac{\Delta p / \Delta z}{\rho_L g} + 1 = \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_L} \right)^3 \left(\frac{E_1 Re_L}{Ga_L} + \frac{E_2 Re_L^2}{Ga_L} \right) \\ \Psi_G = \frac{\Delta p / \Delta z}{\rho_G g} + 1 = \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon - \varepsilon_L} \right)^3 \left(\frac{E_1 Re_G}{Ga_G} + \frac{E_2 Re_G^2}{Ga_G} \right) \\ \Psi_L = 1 + \frac{\rho_G}{\rho_L} (\Psi_G - 1) \end{array} \right.$
Benkrid <i>et al.</i> (1997)	Données de Charpentier et Favier (1975), Morsi (1979), Purwasasmita (1985), Sosa (1981), Larachi <i>et al.</i> (1991a, 1991b, 1991c) et Rode <i>et al.</i> (1994)	$\frac{\Delta p}{\Delta z} = \left(\frac{1}{\varepsilon} \right)^3 \left(\frac{j_G + 1}{A \frac{j_G + 1}{j_L}} \right)^5 \left(E_1 \frac{a_{LS}^2}{36} \mu_L j_L + E_2 \frac{a_{LS}}{6} \rho_L j_L^2 \right)$ $a_{LS} = \frac{6(1 - \varepsilon)}{d_p} + \frac{4}{D}$ avec A est compris entre 0,28 et 0,83

2.2.1 Les corrélations de type Lockhart-Martinelli

Lockhart et Martinelli (1949) ont proposé une corrélation de la perte de pression d'un écoulement diphasique gaz-liquide à travers des conduites horizontales. Les deux idées à la base de cette corrélation sont les suivantes :

- la variation de pression pour la phase liquide est égale à la variation de pression pour la phase gazeuse quelle que soit la configuration de l'écoulement ;
- la somme des volumes occupés par la phase liquide et la phase gazeuse est égale au volume total de la conduite.

En se fondant sur ces hypothèses, les groupements adimensionnels suivants ont été formulés pour décrire la perte de pression de l'écoulement diphasique $(dp/dz)_{LG}$ en fonction des pertes de pression $(dp/dz)_K$ qui existeraient si chaque phase K s'écoulait séparément à travers la conduite :

$$X^2 = \frac{(dp/dz)_L}{(dp/dz)_G}, \quad \phi_L^2 = \frac{(dp/dz)_{LG}}{(dp/dz)_L} \quad \text{et} \quad \phi_G^2 = \frac{(dp/dz)_{LG}}{(dp/dz)_G}$$

Les corrélations de Larkins *et al.* (1961), Charpentier *et al.* (1969), Sato *et al.* (1973b), Midoux *et al.* (1976), Rao *et al.* (1983), Tosun (1984b) et Ratnam *et al.* (1993) sont des exemples de corrélations de ce groupe. Les valeurs du paramètre ϕ_L calculées par diverses corrélations de type Lockhart-Martinelli sont portées en fonction de X dans la figure 10. Il s'avère que les prédictions de ϕ_L fournies par les corrélations des différents auteurs ne diffèrent mutuellement que de fort peu.

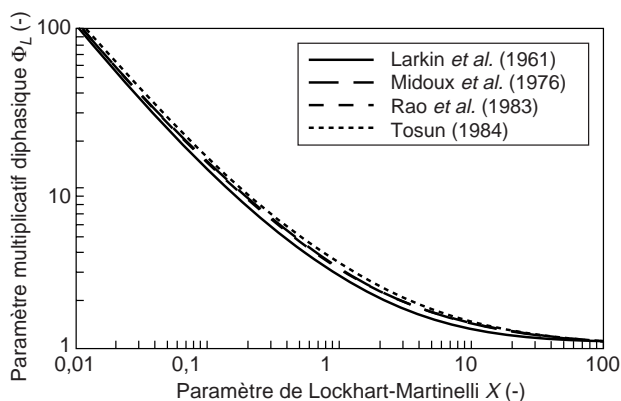


Figure 10

Paramètre ϕ_L calculé par les corrélations de type Lockhart-Martinelli en fonction de X .

Parameter ϕ_L calculated from the Lockhart-Martinelli type correlations versus X .

Le principal inconvénient de ce type de corrélations réside dans le fait qu'elles nécessitent la connaissance préalable des pertes de pression des écoulements monophasiques gazeux et liquide dans des conditions de fonctionnement identiques à celles imposées lors de la détermination de la perte de pression de l'écoulement diphasique. La perte de pression de l'écoulement gazeux ou liquide doit être, soit déterminée expérimentalement, soit prédite au moyen d'une équation. Il est difficile de déterminer expérimentalement la perte de pression monophasique dans un réacteur à l'échelle industrielle. Par ailleurs, l'équation d'Ergun (1952) est souvent utilisée pour calculer la perte de pression de l'écoulement monophasique, en supposant que les constantes qui apparaissent dans cette équation sont valables à la fois pour le gaz et le liquide.

L'incertitude sur les valeurs de ces constantes limite l'utilisation de cette équation. De plus, les corrélations de ce groupe ont été établies sur la base de résultats expérimentaux obtenus dans des domaines de conditions de fonctionnement restreints.

On doit conclure qu'elles ne sont pas universellement applicables et ne peuvent être utilisées pour prédire la perte de pression dans les conditions pour lesquelles les réacteurs industriels fonctionnent.

2.2.2 Les corrélations basées sur les variables de fonctionnement du réacteur et les caractéristiques du milieu granulaire

Ce groupe de corrélations est fondé sur les variables de fonctionnement mesurables du réacteur (débits de liquide et de gaz), les propriétés physiques des phases fluides et les caractéristiques du lit de particules, ou sur leurs combinaisons en termes de nombres adimensionnels. Les corrélations de Turpin et Hundington (1967), Specchia et Baldi (1977), Kan et Greenfield (1979), Matsuura *et al.* (1977), Clements et Schmidt (1980a), Rao *et al.* (1983) et Sai et Varma (1987) sont des exemples de corrélations de ce type. Les variables utilisées diffèrent d'un auteur à un autre. Turpin et Hundington (1967) ont utilisé comme variable indépendante le rapport $Z = Re_G^{1,167}/Re_L^{0,767}$ où Re_K est le nombre de Reynolds pour le fluide K . Ces auteurs ont corrélié en fonction de ce paramètre le coefficient de frottement diphasique f_{LG} défini par la relation :

$$f_{LG} = \frac{(\Delta p / \Delta z)_{LG} d_e}{2\rho_G j_G^2}$$

dans laquelle d_e est un diamètre hydraulique équivalent défini par $(2/3) d_p \varepsilon / (1 - \varepsilon)$. Les exposants 1,167 et 0,767 apparaissant dans la variable indépendante Z ont été fixés par Turpin et Hundington à la suite d'une optimisation des écarts entre les prédictions de la corrélation et leurs données expérimentales obtenues pour des écoulements eau-air. La corrélation de Specchia et Baldi (1977) emploie le même rapport $Z = Re_G^{1,167}/Re_L^{0,767}$ mais corrigé par le facteur ψ tenant

compte des différences de propriétés physiques du liquide par rapport à celles de l'eau. Rao *et al.* (1983) ont utilisé une variable semblable à celle de Turpin et Huntington alors que Sai et Varma (1987) ont proposé d'utiliser simplement le rapport Re_G/Re_L comme variable indépendante.

La mise en corrélation, effectuée par ces différents auteurs, du coefficient de frottement f_{LG} avec les nombres de Reynolds Re_K relève simplement d'une similitude par rapport au résultat bien connu de l'analyse adimensionnelle appliquée aux écoulements monophasiques incompressibles dans les conduites. Par ailleurs, la perte de pression étant fortement dépendante de la porosité du lit, la majorité des corrélations faisant partie de cette catégorie fait apparaître la fraction de vide du lit ε à la troisième puissance comme l'équation d'Ergun (1952).

La corrélation de Clements et Schmidt (1980a) fait apparaître, en plus du nombre de Reynolds de chaque fluide, le nombre de Weber pour tenir compte de l'influence de la tension de surface. Cette corrélation a été recommandée par Hanika et Stanek (1986) pour des lits de particules de petites dimensions utilisés dans les procédés d'hydrogénation en régime ruisselant.

Les valeurs du coefficient f_{LG} calculées par diverses corrélations basées sur les variables de fonctionnement sont portées dans la figure 11 en fonction du nombre de Reynolds du liquide. Les régimes pulsés et à bulles (régimes dit à forte interaction) ont été retenus comme base de comparaison.

On peut constater que les valeurs de f_{LG} prédites par les corrélations de Rao *et al.* et de Sai et Varma restent proches. Par contre, celles-ci s'écartent d'une manière significative des valeurs du coefficient f_{LG} calculées par les corrélations de Turpin et Huntington et de Specchia et Baldi. Ces dernières ne s'accordent mutuellement que pour des valeurs du nombre de Reynolds Re_L suffisamment élevées.

Ces différences s'expliquent par le fait que les corrélations de ce groupe ont été développées sur la base de données expérimentales obtenues dans des conditions de fonctionnement bien spécifiques.

L'extrapolation de chaque corrélation en dehors de son domaine de validation est donc incertaine. Par conséquent, leur utilisation lors de la conception et du fonctionnement d'un réacteur à lit fixe arrosé risque de produire des erreurs de prédiction très importantes.

2.2.3 Les modèles semi-empiriques basés sur l'équation d'Ergun (1952)

Certaines corrélations ont été développées en appliquant l'équation d'Ergun (1952) à un écoulement diphasique gaz-liquide à travers un lit fixe de particules. Pour un écoulement à phases séparées tel que le régime ruisselant, Sweeney (1967) a appliqué l'équation d'Ergun à chaque fluide en supposant que le volume de l'espace vide disponible pour l'écoulement de liquide est réduit par le volume gazeux et vice versa. L'auteur a souligné la nécessité de déterminer

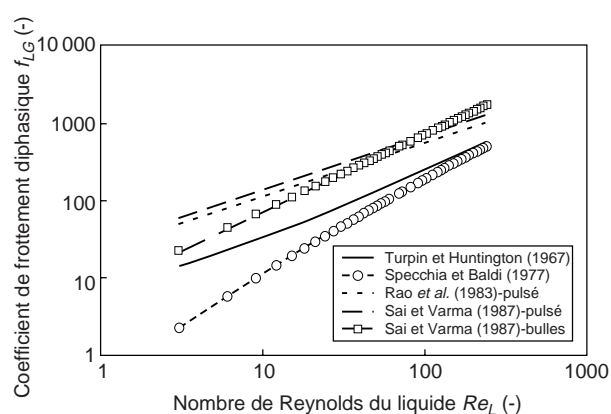


Figure 11

Coefficient de frottement f_{LG} calculé par les corrélations dépendantes des variables de fonctionnement du réacteur en fonction de Re_L . (système eau-air, $Re_G = 98$, $d_p = 3$ mm et $\varepsilon = 0,39$).

Frictional loss coefficient f_{LG} calculated from the correlations depending on the operating variables versus Re_L (water-air system, $Re_G = 98$, $d_p = 3$ mm and $\varepsilon = 0.39$).

expérimentalement les deux coefficients d'Ergun pour chaque lit fixe particulier. Ce modèle nécessite de connaître la perte de pression monophasique de chaque fluide. Specchia et Baldi (1977) ont appliqué l'équation d'Ergun à l'écoulement gazeux en suivant une démarche semblable à celle de Hutton et Leung (1974) reposant sur l'hypothèse que la perte de pression ne dépend que du débit de gaz et du taux de rétention de liquide. Ils recommandent de déterminer expérimentalement les coefficients de l'équation d'Ergun pour le lit fixe renfermant un certain taux de rétention statique de liquide.

La corrélation à laquelle aboutissent ces auteurs renferme quatre paramètres déterminés au moyen de données expérimentales en écoulement gaz-liquide. Aussi bien dans le modèle de Sweeney que dans le modèle de Specchia et Baldi, les forces d'interaction entre le gaz et le liquide ont été négligées. Pour le régime ruisselant, Saez et Carbonell (1985) ont modifié l'équation d'Ergun en proposant des corrélations empiriques pour les perméabilités relatives des fluides établies sur la base de données expérimentales obtenues pour le système eau-air.

En utilisant de nouveau le concept de perméabilités relatives, Saez *et al.* (1986) ont appliqué le modèle de tube à constriction périodique pour l'écoulement gaz-liquide ruisselant. Le modèle résultant ne permet de rendre compte des résultats expérimentaux que d'une manière qualitative. On note qu'aussi bien le modèle de Specchia et Baldi que le modèle de Saez et Carbonell requièrent la connaissance préalable du taux de rétention statique de liquide.

Dans leur approche phénoménologique, Holub *et al.* (1992, 1993) ont représenté la géométrie complexe de l'espace vide du milieu granulaire par une simple fente plate rectangulaire. L'écoulement gaz-liquide ruisselant à travers le lit fixe est modélisé par un écoulement purement annulaire à travers la fente pour lequel l'épaisseur du film de liquide est invariante. La force d'interaction liquide-solide est formulée en se basant sur l'équation d'Ergun et la force de traînée gaz-liquide est supposée négligeable. La forme finale du modèle de Holub *et al.*, semblable à celle déjà trouvée par Sweeney (1967), renferme encore deux paramètres qu'il faut ajuster au moyen de résultats de mesures à réaliser sur des écoulements monophasiques à travers le réacteur à lit fixe considéré. De telles mesures restent difficiles à réaliser dans la pratique industrielle de sorte que les potentialités de ce modèle se trouvent fortement réduites.

Les modèles semi-empiriques passés en revue plus haut ont été établis en régime ruisselant. Benkrid *et al.* (1997) se sont intéressés plutôt aux régimes de forte interaction (écoulements pulsé et à bulles). Ces auteurs ont proposé de formuler l'interaction liquide-solide par une équation d'Ergun (ou simplement par une équation qui est déduite d'une approche de couche limite) en utilisant l'hypothèse de Sweeney (1969). L'interaction gaz-liquide est représentée au moyen du formalisme basé sur le concept de flux de glissement (*drift flux*) qui a été amplement utilisé dans l'analyse des écoulements à phases dispersées à travers des conduites. La corrélation du flux de glissement reste empirique. Benkrid *et al.* ont souligné l'importance de mieux tenir compte des caractéristiques géométriques du lit fixe de particules. La forme finale de leur modèle fait apparaître trois paramètres. Si les deux coefficients d'Ergun sont fixés à leurs valeurs classiques, le modèle de Benkrid *et al.* renferme encore un paramètre qu'il faut ajuster au moyen de résultats expérimentaux à obtenir sur des écoulements gaz-liquide à travers le réacteur en question.

L'avantage de ce groupe de modèles semi-empiriques par rapport aux deux précédents, réside dans le fait qu'il se base sur une approche qui nécessite, en général, moins de constantes d'ajustement. Cependant, bien que l'équation d'Ergun provienne de considérations fondamentales appliquées à l'écoulement monophasique gazeux, les arguments utilisés par les divers auteurs pour pouvoir l'appliquer à l'écoulement gaz-liquide sont restés fort heuristiques. Dans les modèles de Sweeney (1967), de Specchia et Baldi (1977) et de Holub *et al.* (1993), les coefficients d'Ergun sont déterminés pour chaque lit fixe particulier au moyen de mesures en écoulement monophasique. Par ailleurs, dans les autres modèles, les paramètres d'ajustement ont été fixés à des valeurs constantes au moyen de mesures réalisées en écoulement gaz-liquide dans des domaines de conditions de

fonctionnement et de caractéristiques géométriques fort restreints. Il est donc fort peu probable que ces paramètres soient des constantes universelles.

Cet aspect rend les modifications de l'équation d'Ergun peu crédibles dans la mesure où leurs résultats sont très sensibles à une faible variation de la porosité du lit (la porosité apparaît à la troisième puissance). Cette dernière peut varier en fonction de la méthode de remplissage du réacteur surtout pour des particules non sphériques. C'est pour cette raison qu'en comparant les prédictions fournies par les modèles de Specchia et Baldi (1977) et de Saez et Carbonell (1985) avec diverses données de la littérature, Dudukovic *et al.* (1991) ont signalé des désaccords importants (erreurs relatives moyennes de plus de 100 %).

Enfin, peu d'attention a été portée pour caractériser les forces d'interactions entre les phases fluides. Ces forces de traînée ne sont pas du tout négligeables dans les conditions où le flux de quantité de mouvement du gaz devient significatif (c'est-à-dire dans les conditions de pression de fonctionnement et/ou de vitesse superficielle de gaz élevées). Par conséquent, ces modèles semi-empiriques ne peuvent être recommandés avec fiabilité pour prédire la perte de pression d'un écoulement gaz-liquide à travers un réacteur à lit fixe industriel.

La grande majorité des résultats expérimentaux et des corrélations de la perte de pression ont été obtenus sur des réacteurs fonctionnant à la pression atmosphérique. Cependant, dans la pratique industrielle, les réacteurs à lit fixe arrosé fonctionnent dans des domaines de hautes pressions (de l'ordre de 25-40 MPa). Dans ces conditions, les propriétés physiques du gaz changent considérablement et l'hydrodynamique du réacteur est profondément affectée. On doit conclure que les corrélations et les modèles de la perte de pression passés en revue ne peuvent être utilisés de façon fiable lors de la conception et du fonctionnement des réacteurs à lit fixe industriels.

2.3 Influence de la pression de fonctionnement sur la perte de pression d'un écoulement gaz-liquide descendant à travers un réacteur à lit fixe

Hasseni *et al.* (1987b) sont les premiers à avoir analysé l'influence de la pression de fonctionnement sur la perte de pression en écoulement diphasique cocourant descendant à travers un lit fixe de particules. Par la suite, des études plus exhaustives ont été effectuées dans les conditions de hautes pressions par Wammes *et al.* (1991a, 1991b), Wammes et Westerterp (1990, 1991), Larachi *et al.* (1991a, 1994) et Al-Dahhan et Dudukovic (1994). Les résultats obtenus par ces auteurs ont mis en évidence en régime ruisselant l'effet significatif de la pression de fonctionnement sur la perte de pression de l'écoulement gaz-liquide (Al-Dahhan *et al.*, 1997).

2.3.1 Résultats expérimentaux sur l'effet de la pression de fonctionnement du réacteur

Les données expérimentales de Wammes *et al.* (1991b) obtenues pour les systèmes eau-azote et eau-hélium sont représentées sur la figure 12. Ces résultats montrent que lorsque les vitesses superficielles du gaz et du liquide sont maintenues constantes, la perte de pression croît avec la pression de fonctionnement du réacteur (eau- N_2 , $j_G = 0,1$ m/s, de 0,5 MPa à 6,0 MPa) et avec la masse molaire du gaz ($j_G = 0,1$ m/s, 6,0 MPa, de He à N_2). Cet effet est attribué à l'augmentation de la masse volumique du gaz.

Cette dernière conduit à une croissance du flux de quantité de mouvement $\rho_G j_G^2$ et donc à une intensification des effets de dissipation mécanique à l'interface gaz-liquide occasionnés par la force de traînée entre les deux phases fluides. Par contre, lorsque les débits massiques du gaz et du liquide sont maintenus constants, la perte de pression décroît lorsque la pression de fonctionnement augmente. Cet effet est occasionné par la décroissance du flux de quantité de mouvement du gaz $\rho_G j_G^2 = G_G^2 / \rho_G$.

L'effet de la masse volumique du gaz sur la perte de pression, pour une valeur constante de la vitesse superficielle du gaz, est explicitement mis en évidence dans la figure 13 où sont représentées les données expérimentales d'Al-Dahhan et Dudukovic (1994). Une pression en hélium (2,13 MPa) environ sept fois plus élevée que la pression en azote (0,31 MPa) conduit, toute chose étant par ailleurs constante, à des masses volumiques d'hélium et d'azote identiques. Dans ces

conditions, pour un même débit massique de liquide, les deux systèmes hexane-azote et hexane-hélium correspondent approximativement à la même perte de pression.

Ce résultat démontre que l'effet de l'augmentation de la pression de fonctionnement du réacteur est dû essentiellement à la croissance de la masse volumique du gaz.

En analysant les résultats expérimentaux obtenus dans les conditions de hautes pressions, on peut tirer des conclusions semblables à celles obtenues dans les conditions de pression atmosphérique :

- pour une pression de fonctionnement constante, la perte de pression croît avec les débits massiques ou les vitesses superficielles de gaz et de liquide (figures 12 et 13) ;
- pour des débits massiques de fluides et une pression de fonctionnement donnés, la perte de pression croît avec la viscosité dynamique du liquide ;
- pour des débits massiques de fluides et une pression de fonctionnement donnés, la perte de pression décroît quand le diamètre équivalent des particules augmente comme le montre la figure 14 reprenant des données expérimentales obtenues par Al-Dahhan et Dudukovic (1994) pour diverses caractéristiques géométriques du lit granulaire ($d_p = 1,14$ mm, 1,52 mm et 1,99 mm) ;
- dans les régimes de forte interaction, la perte de pression pour les systèmes moussants est plus importante que celle observée pour les systèmes non moussants. Cette propriété est démontrée dans la figure 15 où sont représentées des données expérimentales obtenues par Larachi *et al.* (1991a)

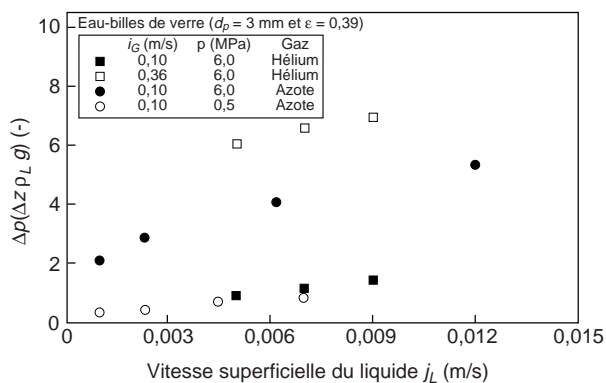


Figure 12

Influences des vitesses superficielles des fluides, de la pression de fonctionnement et de la masse molaire du gaz sur la perte de pression. Résultats expérimentaux de Wammes *et al.* (1991b) : systèmes eau-hélium et eau-azote, billes de verre $d_p = 3$ mm et porosité $\varepsilon = 0,39$.

Influences of the superficial velocities of fluids, operating pressure and molar weight of gas on the pressure drop. Experimental results of Wammes et al. (1991b): water-helium and water-nitrogen systems, glass beads $d_p = 3$ mm and bed porosity $\varepsilon = 0.39$.

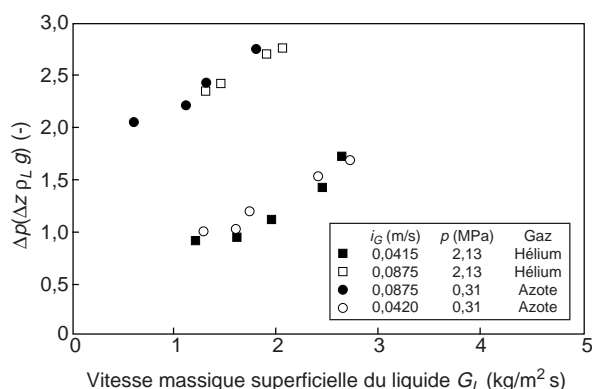


Figure 13

Influence de la masse volumique du gaz sur la perte de pression. Résultats expérimentaux d'Al-Dahhan et Dudukovic (1994) : systèmes hexane-hélium et hexane-azote, billes de verre $d_p = 1,14$ mm et porosité $\varepsilon = 0,392$.

Influence of the gas density on the pressure drop. Experimental results of Al-Dahhan and Dudukovic (1994): hexane-helium and hexane-nitrogen systems, glass beads $d_p = 1.14$ mm and bed porosity $\varepsilon = 0.392$.

pour les systèmes eau-azote (non moussant) et eau + 1% éthanol-azote (moussant). La différence entre les valeurs de la perte de pression mesurées pour les deux systèmes s'atténue lorsque la pression de fonctionnement du réacteur augmente (de 2,1 MPa à 5,1 MPa). Cet effet est probablement dû à la densification du gaz qui réduit le volume total occupé par les fines bulles stables persistant au sein du système inhibiteur de coalescence.

2.3.2 Corrélations de la perte de pression développées pour des pressions de fonctionnement élevées

Les travaux expérimentaux effectués sur des réacteurs fonctionnant à des hautes pressions ont permis le développement de quelques corrélations de la perte de pression. Le tableau 4 regroupe toutes ces corrélations.

À l'issue d'une analyse adimensionnelle simplifiée, Ellman *et al.* (1988) ont mis en corrélation le coefficient de frottement diphasique, tel qu'il a été défini par Turpin et Hundington (1967), le nombre de Reynolds pour le liquide Re_L , le nombre de Weber pour le liquide We_L et le paramètre de Lockhart-Martinelli X modifié comme suit :

$$X \equiv \left(\frac{\rho_L}{\rho_G} \right)^{\frac{1}{2}} \frac{j_L}{j_G} = \left(\frac{We_L}{We_G} \right)^{\frac{1}{2}} = X_L = \frac{1}{X_G}$$

La corrélation, basée sur une large banque de données expérimentales, comportant entre autres les résultats de mesures à hautes pressions de Hasseni *et al.* (1987b), renferme deux équations : l'une est applicable pour le régime

dit de faible interaction, c'est-à-dire ruisselant ($X_G < 0,8$), l'autre pour le régime dit de forte interaction, c'est-à-dire pulsé, à bulles et à gouttelettes ($X_G > 1,2$). L'ensemble des deux équations de la corrélation d'Ellman *et al.* renferme huit constantes d'ajustement. En se basant sur plus de données expérimentales obtenues à hautes pressions, Larachi *et al.* (1991a) proposent une autre corrélation empirique exprimant le coefficient de frottement diphasique en fonction des mêmes groupements adimensionnels que ceux utilisés par Ellman *et al.* Cette corrélation, applicable pour les régimes ruisselant et pulsé, renferme encore cinq constantes d'ajustement. Larachi *et al.* (1991a) ont conclu que cette corrélation prédisait leurs données expérimentales de perte de pression mieux que celle d'Ellman *et al.* (1988).

Aussi bien Ellman *et al.* que Larachi *et al.*, comme beaucoup d'autres auteurs, ont corrélié séparément la perte de pression et le taux de rétention comme s'ils étaient indépendants. Cette approche se justifie difficilement dans la mesure où ces deux paramètres sont nécessairement liés par des équilibres de forces. C'est la raison pour laquelle Wammes *et al.* (1991b) ont suggéré d'utiliser un système de deux équations pour calculer simultanément la perte de pression et le taux de rétention dynamique de liquide pour le régime ruisselant. L'ensemble des deux corrélations renferme six constantes d'ajustement. Les critères adimensionnels employés par Wammes *et al.* (1991b) sont les suivants : le coefficient de frottement diphasique de Turpin et Hundington, les nombres de Reynolds pour le liquide et pour le gaz, et le nombre de Galiléo pour le liquide modifié pour prendre en compte la

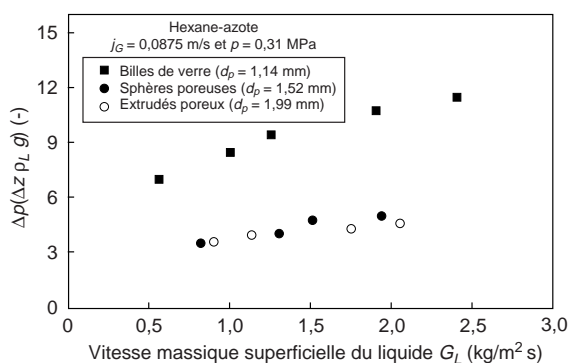


Figure 14

Influence des caractéristiques géométriques du lit granulaire sur la perte de pression. Résultats expérimentaux d'Al-Dahhan et Dudukovic (1994): système hexane-azote, $p = 0,31$ MPa et $j_G = 0,0875$ m/s.

Influence of the geometrical characteristics of packed bed on the pressure drop. Experimental results of Al-Dahhan and Dudukovic (1994): hexane-nitrogen system, $p = 0.31$ MPa and $j_G = 0.0875$ m/s.

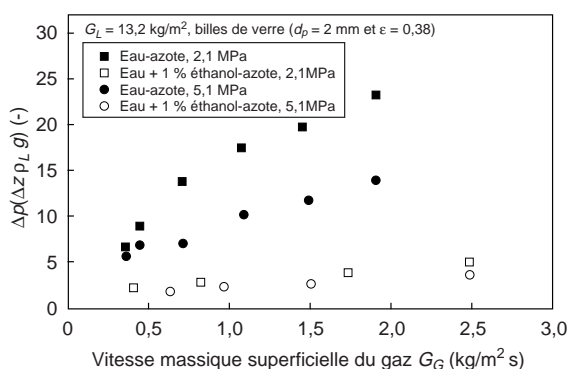


Figure 15

Influence du phénomène de moussage sur la perte de pression pour différentes valeurs de la pression de fonctionnement. Résultats expérimentaux de Larachi *et al.* (1991a) : systèmes eau-azote et eau + 1% éthanol-azote, billes de verre $d_p = 2$ mm et porosité $\epsilon = 0,38$; $G_L = 13,2$ kg/m² s.

Influence of the foaming phenomenon on the pressure drop for two values of the operating pressure. Experimental results of Larachi et al. (1991a): water-nitrogen and water + 1% ethanol-nitrogen systems, glass beads $d_p = 2$ mm and bed porosity $e = 0.38$, $G_L = 13.2$ kg/m² s.

TABLEAU 4

Modèles et corrélations de la perte de pression d'un écoulement gaz-liquide à travers un réacteur à lit fixe arrosé (pressions de fonctionnement élevées)

Models and correlations for the prediction of pressure drop in the cocurrent downward flow through a fixed bed reactor: elevated operating pressure

Auteurs	Pression de fonctionnement	Approches
Ellman <i>et al.</i> (1988)	0,1-10 MPa	Empirique
$\frac{(\Delta p/\Delta z)d_h \rho_G}{2G_G^2} = 200(X_G \delta)^{-1,2} + 85(X_G \delta)^{-0,5} \text{ avec } \delta = \frac{Re_L^2}{(0,001 + Re_L^{1,5})}$		
Wammes <i>et al.</i> (1991b)	0,2-7,5 MPa	Empirique
$\begin{cases} \frac{(\Delta p/\Delta z)d_p}{\frac{1}{2}\rho_G j_G^2} = 155 \left(\frac{\rho_G j_G d_p \varepsilon}{\mu_G (1-\varepsilon)} \right)^{-0,37} \left(\frac{1-\varepsilon}{\varepsilon(1-\beta_{tot})} \right) \\ \beta_d = 3,8 \left(\frac{\rho_L j_L d_p}{\mu_L} \right)^{0,55} \left(\frac{d_p^3 \rho_L^2 g}{\mu_L^2} \left(1 + \frac{\Delta p/\Delta z}{\rho_L g} \right) \right)^{-0,42} \left(\frac{6(1-\varepsilon)d_p}{\varepsilon} \right)^{0,65} \end{cases}$		
Larachi <i>et al.</i> (1991a)	0,2-8,1 MPa	Empirique
$\frac{(\Delta p/\Delta z)d_h \rho_G}{2G_G^2} = \frac{1}{\left((Re_L We_L)^{0,25} X_G \right)^{1,5}} \left(31,3 + \frac{17,3}{\left((Re_L We_L)^{0,25} X_G \right)^{1,5}} \right)$		
Holub <i>et al.</i> (1992, 1993) Al-Dahhan et Dudukovic (1994)	0,31-5 MPa	Phénoménologique
cf. tableau 3		
Al-Dahhan <i>et al.</i> (1998)	0,35-5 MPa	Phénoménologique
$\begin{cases} \Psi_L = \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_L} \right)^3 \left(\frac{E_1 Re_L}{Ga_L} + \frac{E_2 Re_L^2}{Ga_L} \right) + f_S \frac{\varepsilon_G}{\varepsilon_L} \left(1 - \frac{\rho_G}{\rho_L} - \Psi_L \right) \\ \Psi_G = \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon - \varepsilon_L} \right)^3 \left(\frac{E_1 (Re_G - f_V \varepsilon_G Re_i)}{Ga_G} + \frac{E_2 (Re_G - f_V \varepsilon_G Re_i)^2}{Ga_G} \right) \end{cases}$ $\Phi_L = \frac{10}{E_1^{0,75}} \frac{\mu_L \rho_G}{\mu_G \rho_L} \sqrt{\Psi_L Ga_L \frac{\varepsilon_L}{\varepsilon^3} \left(1 + f_S \frac{\varepsilon_G \rho_G \Psi_G}{\varepsilon_L \rho_L \Psi_L} \right)}$ $\eta_L = \frac{1}{5E_1^{0,25}} \sqrt{\Psi_L Ga_L \left(\frac{\varepsilon_L}{\varepsilon} \right)^3 \left(1 + f_S \frac{\varepsilon_G \rho_G \Psi_G}{\varepsilon_L \rho_L \Psi_L} \right)}$ $Re_i = \Phi_L \eta_L \text{ pour } 0 < \eta_L < 5; \quad Re_i = \Phi_L (-3,05 + 5 \ln \eta_L) \text{ pour } 5 < \eta_L < 30$ $Re_i = \Phi_L (5,5 + 2,5 \ln \eta_L) \text{ pour } \eta_L > 30$ $f_S = -4,4 \cdot 10^{-2} Re_G^{0,15} Re_L^{0,15}, \quad f_S = -2,3 Re_G^{0,05} Re_L^{-0,05}$ $\Psi_L = 1 + \frac{\rho_G}{\rho_L} (\Psi_G - 1)$		

force piston associée au gradient de pression. Il est difficile de justifier l'utilisation du nombre de Reynolds pour le gaz puisque l'influence de la viscosité dynamique de ce fluide n'a pu être mise en évidence expérimentalement.

Al-Dahhan et Dudukovic (1994) ont comparé leurs données expérimentales, sur la perte de pression et le taux de rétention total de liquide, obtenues à hautes pressions avec les prédictions du modèle phénoménologique de Holub *et al.* (1992, 1993) ainsi qu'avec celles des trois autres corrélations évoquées plus haut.

Ils ont conclu que leurs données expérimentales étaient le mieux représentées par le modèle de Holub *et al.* Ce modèle renferme encore deux paramètres qu'il faut évaluer au moyen de mesures à réaliser sur des écoulements monophasiques gazeux à travers le réacteur à lit fixe considéré.

Les prédictions de la perte de pression fournies par les corrélations empiriques évoquées plus haut et par le modèle de Holub *et al.* (1993) sont comparées avec des données expérimentales de Wammes *et al.* (1991b) et de Larachi *et al.* (1991a) respectivement dans les figures 16 et 17. Comme les valeurs des paramètres E_1 et E_2 du modèle de Holub *et al.* n'ont pas été spécifiées par les expérimentateurs, elles ont été fixées à celles recommandées par McDonald *et al.* (1979) ($E_1 = 180$ et $E_2 = 1,8$). Les données de Wammes *et al.* retenues concernent le système eau-air à une pression de 5,1 MPa tandis que celles de Larachi *et al.* sont relatives au système polycarbonate propylène-azote à une pression de 2,1 MPa.

Ces résultats montrent que les valeurs prédites par les corrélations peuvent différer mutuellement et s'écarter des points expérimentaux d'une manière considérable. Le modèle de Holub *et al.* reproduit le plus fidèlement l'allure qualitative des résultats expérimentaux. Néanmoins, ce modèle a tendance à sous-estimer la perte de pression.

Dans le but d'avoir une évaluation plus synthétique des méthodes de calculs évoquées plus haut, les valeurs de la perte de pression calculées par les trois corrélations et par le modèle de Holub *et al.* (1993) ont été comparées à l'ensemble des données expérimentales obtenues à hautes pressions. Cet ensemble comporte les résultats de Wammes *et al.* (1991a, 1991b), Wammes et Westerterp (1990, 1991), Larachi *et al.* (1991a) et Al-Dahhan et Dudukovic (1994) (près de 230 points expérimentaux). Les résultats de calculs de l'erreur relative moyenne associée à chaque corrélation sont synthétisés dans le tableau 5.

On peut voir que les corrélations d'Ellman *et al.* et de Larachi *et al.*, qui ont été recommandées par Wild *et al.* (1991), présentent les erreurs relatives moyennes de prédiction les plus importantes (autour de 70 %). Il s'avère que la forme simplifiée de l'analyse adimensionnelle utilisée par ces auteurs n'est pas correctement adaptée à la complexité du problème hydrodynamique. De plus, les valeurs des nombreuses constantes d'ajustement qui apparaissent dans ces deux corrélations ne sont pas

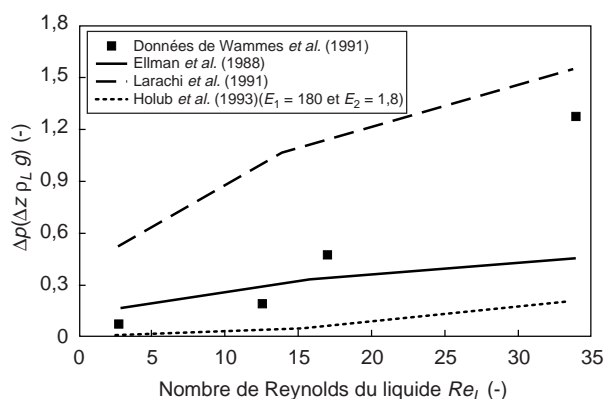


Figure 16

Comparaison des prédictions de la perte de pression fournies par les corrélations empiriques développées à hautes pressions et par le modèle de Holub *et al.* (1993) avec des données expérimentales de Wammes *et al.* (1991b): système eau-azote, billes de verre $d_p = 3$ mm et porosité $\varepsilon = 0,39$, $p = 5,1$ MPa et $j_G = 0,021$ m/s.

Comparison of the predictions of pressure drop given from the empirical correlations for elevated pressures and from the model of Holub *et al.* (1993) with the experimental data of Wammes *et al.* (1991b): water-nitrogen system, glass beads $d_p = 3$ mm and bed porosity $\varepsilon = 0.39$, $p = 5.1$ MPa and $j_G = 0.021$ m/s.

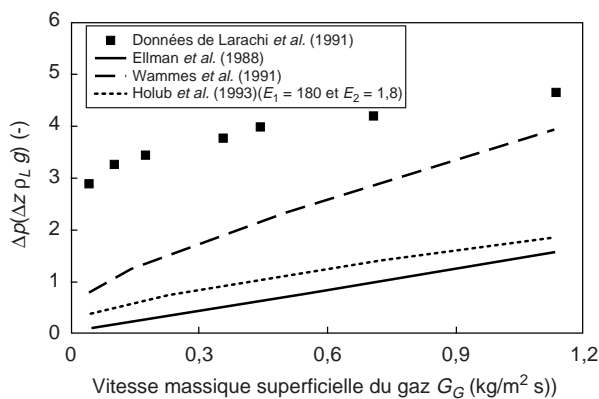


Figure 17

Comparaison des prédictions de la perte de pression fournies par les corrélations empiriques développées à hautes pressions et par le modèle de Holub *et al.* (1993) avec des données expérimentales de Larachi *et al.* (1991a): système polypropylène carbonate-azote, billes de verre $d_p = 2$ mm et porosité $\varepsilon = 0,38$, $p = 2,1$ MPa et $G_L = 13,2$ kg/m²s.

Comparison of the predictions of pressure drop given from the empirical correlations for elevated pressures and from the model of Holub *et al.* (1993) with the experimental data of Larachi *et al.* (1991a): polypropylene carbonate-nitrogen system, glass beads $d_p = 2$ mm and bed porosity $\varepsilon = 0.38$, $p = 2.1$ MPa and $G_L = 13.2$ kg/m²s.

TABLEAU 5

Comparaisons des prédictions des corrélations et du modèle de Holub *et al.* (1993) avec les données sur la perte de pression et le taux de rétention obtenues dans les conditions de hautes pressions de fonctionnement (données de Wammes *et al.*, 1991a, b ; Wammes et Westerterp, 1990, 1991 ; Larachi *et al.*, 1991a ; et Al-Dahhan et Dudukovic, 1994)

Comparisons of the predictions of pressure drop and liquid holdup given from the empirical correlations and from the model of Holub et al. (1993) with the experimental data obtained at elevated operating pressures (data of Wammes et al., 1991a, b; Wammes and Westerterp, 1990, 1991; Larachi et al., 1991a; and Al-Dahhan and Dudukovic, 1994)

Auteurs	Wammes <i>et al.</i> (1991b)	Ellman <i>et al.</i> (1988)	Larachi <i>et al.</i> (1991a)	Holub <i>et al.</i> (1993)
Erreur relative moyenne (-)	0,524	Perte de pression		0,530
		0,648	0,766	
Erreur relative moyenne (-)	0,233	Taux de rétention		0,132
		0,334	0,272	

universelles mais restent spécifiques aux conditions expérimentales utilisées par ces auteurs. En outre, la corrélation de Wammes *et al.* et le modèle de Holub *et al.* présentent une meilleure précision que celle des deux corrélations précédentes, mais leurs erreurs relatives moyennes restent élevées (autour de 50 %). Néanmoins, l'erreur relative moyenne de prédiction par le modèle de Holub *et al.* est probablement plus faible que 53 % si l'on tient compte des véritables valeurs des paramètres E_1 et E_2 caractérisant chaque lit. En effet, les valeurs de ces paramètres ont été fixées respectivement à 180 et 1,8 lorsqu'elles n'ont pas été spécifiées par les expérimentateurs.

Dernièrement, les données expérimentales d'Al-Dahhan et Dudukovic (1994), obtenues pour le système hexane-azote et pour deux valeurs de la pression de fonctionnement (0,31 MPa et 3,55 MPa), ont pu être confrontées dans la figure 18 aux prédictions du modèle de Holub *et al.* On note que ce modèle sous-estime la perte de pression surtout dans les conditions de pression et de vitesse superficielle de gaz élevées ($j_G = 0,085$ m/s et $p = 3,55$ MPa).

L'écart observé dans ces conditions s'attribue au fait que le modèle de Holub *et al.* ne prend pas en considération les forces d'interaction entre le gaz et le liquide. Or ces forces de cisaillement interfaciales deviennent non négligeables lorsque la vitesse superficielle du gaz et la pression de fonctionnement sont élevées à cause de la croissance du flux de quantité de mouvement gazeux $\rho_G j_G^2$. Pour répondre à cet inconvénient, Al-Dahhan *et al.* (1998) ont étendu le modèle phénoménologique de Holub *et al.* (1993) en prenant en considération l'interaction entre les phases gazeuse et liquide. Cette interaction est prise en compte en introduisant deux facteurs dont l'un f_V représente le rapport des vitesses

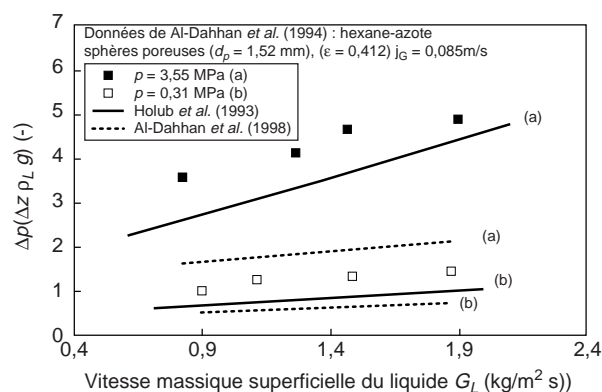


Figure 18

Amélioration apportée à hautes pressions par le modèle étendu d'Al-Dahhan *et al.* (1998) dans la prédiction de la perte de pression. Confrontation avec des données expérimentales d'Al-Dahhan et Dudukovic (1994) : système hexane-azote, sphères poreuses $d_p = 1,52$ mm et $\varepsilon = 0,412$; $j_G = 0,085$ m/s, $E_1 = 260,2$ et $E_2 = 2,48$.

Improvement of the predictions of pressure drop at elevated pressures exhibited by the model of Al-Dahhan et al. (1998). Comparison with the experimental data of Al-Dahhan and Dudukovic (1994): hexane-nitrogen system, porous spheres $d_p = 1.52$ mm and $\varepsilon = 0.412$, $j_G = 0.085$ m/s, $E_1 = 260.2$ and $E_2 = 2.48$.

phasiques et l'autre f_S le rapport des contraintes de cisaillement phasiques à l'interface gaz-liquide. Ces deux facteurs ont été corrélés empiriquement en fonction des nombres de Reynolds du gaz et du liquide sur la base d'un ensemble restreint de données expérimentales évoqué dans l'article d'Al-Dahhan *et al.* (1998). Les résultats de la résolution numérique du modèle étendu d'Al-Dahhan *et al.* (1998) sont présentés en termes de perte de pression dans la figure 18.

On peut remarquer que la prédiction de la perte de pression est sensiblement améliorée par rapport à celle du modèle original de Holub *et al.*, surtout pour des pressions de fonctionnement élevées (courbe (a), $p = 3,55$ MPa). Al-Dahhan *et al.* (1998) signalent, sur la base de leurs résultats de mesures, que l'erreur relative de prédiction de la perte de pression par le modèle étendu est réduite à environ 20 %. Néanmoins, une confrontation des prédictions de ce modèle à un ensemble plus large de données expérimentales est nécessaire pour vérifier cette conclusion et valider ainsi les corrélations proposées pour les paramètres f_V et f_S . Enfin, le modèle étendu n'évite pas encore la nécessité de déterminer préalablement les deux paramètres E_1 et E_2 au moyen d'expériences à réaliser sur des écoulements gazeux.

On doit conclure de cette analyse qu'aucune des corrélations empiriques de la perte de pression développées à hautes pressions ne peut être recommandée lors des calculs de

conception des réacteurs à lit fixe industriels. Par contre, le modèle étendu d'Al-Dahhan *et al.* (1998) présente des perspectives intéressantes et, jusqu'à preuve de mieux, il peut être recommandé pour les calculs pratiques pour autant qu'une détermination expérimentale des paramètres E_1 et E_2 soit possible. Une telle détermination reste cependant difficile à réaliser en pratique.

3 TAUX DE RÉTENTION DE LIQUIDE DANS UN RÉACTEUR À LIT FIXE ARROSÉ

Le taux de rétention de liquide est un paramètre important lors de la conception et du fonctionnement d'un réacteur à lit fixe arrosé. Il est étroitement lié à la perte de pression et influence divers paramètres tels que le temps de résidence moyen de la phase liquide dans le réacteur, le taux de mouillage de la surface des particules, l'épaisseur moyenne du film de liquide autour du catalyseur solide, le transfert de masse, le transfert de chaleur vers l'extérieur, etc.

3.1 Composantes du taux de rétention et techniques expérimentales

Le taux de rétention total, ε_L , est défini comme le rapport du volume total du liquide sur le volume du réacteur. Par ailleurs, la saturation totale de liquide, β_t , est définie comme le rapport du volume total de liquide sur le volume de l'espace vide (extragranulaire et intragranulaire) du lit ($0 < \beta_t < 1$). Ces deux paramètres sont liés par la relation simple : $\varepsilon_L = \varepsilon \beta_t$. Si les particules sont poreuses, le taux de rétention total est la somme du taux de rétention interne et du taux de rétention externe. Ce dernier peut être décomposé en taux de rétention dynamique et statique (Shulman *et al.*, 1955). Le taux de rétention statique est la fraction du liquide qui reste, stagnant au voisinage des points de contact des particules entre elles et entre les particules et la paroi de la colonne, tandis que le taux de rétention dynamique est la fraction du liquide constamment renouvelé dans le réacteur.

Le taux de rétention statique dépend des propriétés physiques du liquide, de la forme et de la dimension des particules ainsi que de la mouillabilité du catalyseur (en relation avec l'état de surface microscopique du catalyseur). Le taux de rétention dynamique est fonction des débits de liquide et de gaz, des propriétés physiques des fluides et des caractéristiques géométriques du lit.

Diverses techniques ont été utilisées par les auteurs pour déterminer le taux de rétention de liquide.

- 1 En retranchant le poids du réacteur sec du poids du réacteur durant son fonctionnement.
- 2 En fermant simultanément l'alimentation du liquide et du gaz ainsi que la sortie du réacteur en fonctionnement et puis en vidant le liquide. Le poids du liquide récolté est proportionnel au taux de rétention dynamique.

En retranchant le poids du réacteur sec du poids du réacteur après vidange, le taux de rétention statique peut être déterminé.

- 3 En utilisant la technique de traçage en phase liquide. À partir de la courbe de distribution des temps de séjour, on peut déterminer le taux de rétention total. La queue de cette distribution est attribuée au volume de liquide statique. On peut donc en déduire les taux de rétention statique et dynamique.
- 4 En exposant le liquide à un rayonnement électromagnétique et en mesurant l'atténuation de celui-ci, le taux de rétention total peut être évalué l'atténuation étant connue lorsque le réacteur est à sec.
- 5 En mesurant la conductivité électrique du lit traversé par le liquide, le taux de rétention total peut être déterminé.
- 6 En mesurant le volume du liquide à l'extérieur du lit lorsqu'une quantité connue de liquide s'écoule en circuit fermé à travers le réacteur.

Les résultats de mesures du taux de rétention de liquide varient en fonction de la technique utilisée. En effet, la méthode 2 est une technique de mesure effectuée sous des conditions statiques, tandis que les méthodes 1 et 3 sont réalisées pendant le fonctionnement du réacteur. Dans la méthode 2, la quantité de liquide récolté par vidange reste dépendante du temps d'égouttage. On note que c'est la méthode 3 qui fournit les résultats les plus fiables. Néanmoins, cette dernière reste délicate à appliquer dans le cas des particules poreuses dans la mesure où le liquide renfermé dans les micropores des particules contribue à une partie de la rétention statique. Les échanges par diffusion entre cette fraction de liquide est celle occupant l'espace vide extragranulaire s'effectuent sur une échelle de temps relativement importante comparée au temps de résidence moyen du traceur dans le réacteur. Le taux de rétention statique déterminé par la technique de traçage est toujours plus faible que celui obtenu par la technique d'égouttage (Kushalkar et Pangarkar, 1990). Cependant, la valeur du taux de rétention total obtenue par la technique de traçage dépend de la forme de la courbe caractérisant la distribution temporelle de la concentration de traceur à l'entrée du réacteur.

Enfin, Kantzas (1994) a exploré les possibilités offertes par la technique tomographique à absorption de rayon X assistée par ordinateur pour l'évaluation de la distribution spatiale du taux de rétention de liquide dans un réacteur pilote.

3.2 Résultats expérimentaux et corrélations obtenus à la pression atmosphérique

D'abondants travaux concernant le taux de rétention de liquide dans les réacteurs à lit fixe arrosé fonctionnant à la pression atmosphérique ont été présentés dans la littérature.

En analysant les résultats expérimentaux publiés, on peut tirer les conclusions suivantes.

- Pour un débit massique de gaz constant, le taux de rétention dynamique croît avec le débit massique de liquide. Pour un débit de liquide constant, il décroît lorsque le débit massique de gaz augmente.
- Pour des débits massiques de gaz et de liquide donnés, le taux de rétention dynamique croît avec la viscosité du liquide. En effet, l'augmentation de la viscosité dynamique du liquide conduit à une croissance de la contrainte de cisaillement à l'interface liquide-solide. Cette dernière génère une décélération du film et donc une augmentation du temps de résidence moyen du liquide dans le réacteur.
- Pour des débits massiques de gaz et de liquide donnés, le taux de rétention dynamique décroît lorsque la tension de surface augmente.
- La viscosité dynamique du gaz semble avoir peu d'influence sur le taux de rétention de liquide. Comme la viscosité dynamique du gaz est quasi indépendante de la pression et augmente légèrement avec la température, l'influence de cette grandeur sur le taux de rétention reste difficile à dégager.

Les études expérimentales ont mené à de nombreuses corrélations du taux de rétention de liquide. Dans le tableau 6, on a regroupé les plus récentes de ces corrélations développées dans les conditions de pression atmosphérique. Il existe, en général, deux groupes de corrélations.

- Celles qui expriment une relation entre le taux de rétention de liquide (total ou dynamique) et le paramètre X de Lockhart et Martinelli (1949). Les corrélations de Larkins *et al.* (1961), Hochman et Effron (1969), Charpentier et Favier (1975), Sato *et al.* (1973b), Midoux *et al.* (1976), Morsi *et al.* (1982) et Rao *et al.* (1983) appartiennent à ce groupe.
- Celles qui expriment le taux de rétention de liquide (total ou dynamique) en fonction des variables de fonctionnement du réacteur, des propriétés physiques des fluides et des caractéristiques géométriques du milieu granulaire. Les corrélations de Turpin et Huntington (1967), Goto et Smith (1975), Specchia et Baldi (1977), Matsuura *et al.* (1979b), Clements et Schmidt (1978, 1980b), Sai et Varma (1988), Burghardt *et al.* (1995) et Benkrid *et al.* (1997) appartiennent à cette catégorie.

Les corrélations du premier groupe dépendent des pertes de pression des écoulements monophasiques gazeux et liquide avec tous les inconvénients déjà mentionnés dans le paragraphe précédent (cf. § 2.2.1). De plus, certaines de ces corrélations ne tiennent pas compte explicitement des propriétés physiques des phases fluides et des caractéristiques du garnissage.

Ces paramètres ne sont pris en compte qu'implicitement via les pertes de pression monophasiques. Par ailleurs, la corrélation de Benkrid *et al.* (1997), basée sur l'équation de la couche limite, nécessite la connaissance préalable de la perte de pression de l'écoulement gaz-liquide. Les valeurs de la saturation totale de liquide calculées par diverses corrélations de type Lockhart-Martinelli sont portées en fonction du paramètre X dans la figure 19. Le régime ruisselant a été retenu comme base de comparaison. Le lit granulaire est constitué de sphères de 2,5 et 4,0 mm de diamètre avec une porosité respective de 0,38 et 0,6. Les corrélations de Sato *et al.* (1973b) et de Rao *et al.* (1983) sont dépendantes de la géométrie du lit tandis que celle de Midoux *et al.* (1976) ne l'est pas. Une diminution du diamètre des particules conduit à une croissance de la saturation totale de liquide. On peut voir que les valeurs de la saturation totale de liquide calculées par les corrélations de Sato *et al.* et de Rao *et al.* restent voisines mais elles ne s'accordent pas avec les prédictions fournies par l'expression de Midoux *et al.*

Plusieurs corrélations du second groupe ne prennent pas du tout en considération l'influence de la phase gazeuse sur le taux de rétention de liquide. Les valeurs du taux de rétention dynamique calculées par quelques corrélations basées sur les variables de fonctionnement du réacteur sont comparées dans la figure 20 avec des données de Wammes et Westerterp (1990). Celles-ci ont été obtenues pour le système eau-azote à la pression de 1,5 MPa s'écoulant à travers un lit constitué de billes de verre de 3 mm de diamètre. Il apparaît clairement que les prédictions des corrélations examinées présentent entre elles des différences importantes et que l'accord avec les résultats des mesures est loin d'être satisfaisant.

La plupart de ces corrélations ont été établies sur la base d'expériences réalisées avec le système eau-air et des garnissages qui ne sont pas utilisés dans les réacteurs à lit fixe arrosé. De plus, ces expériences ont été réalisées à basses pressions et à la température ambiante, conditions de fonctionnement qui ne sont pas représentatives des conditions des réacteurs industriels. Il est donc incertain d'appliquer ces corrélations lors des calculs d'application relatifs aux réacteurs à lit fixe fonctionnant sous pression.

3.3 Résultats expérimentaux et corrélations obtenus pour des pressions de fonctionnement élevées

Il est admis dans la littérature qu'en régime ruisselant le gaz n'a presque aucune influence sur le taux de rétention de liquide. L'écoulement est alors décrit par le régime dit « de faible interaction » (Shah, 1979 ; Ramachandran et Chaudhri, 1983 ; Hanika et Stanek, 1986). Cependant, cette conclusion est basée sur des expériences réalisées à la pression atmosphérique. Elle n'est plus valable à haute pression à cause des forces d'interaction gaz-liquide qui deviennent non négligeables dans ces conditions.

TABLEAU 6

Corrélations du taux de rétention de liquide dans un réacteur à lit fixe arrosé (pression atmosphérique)
Models and correlations for the prediction of liquid holdup in a trickle-bed reactor: atmospheric pressure

Auteurs	Systèmes étudiés (pression atmosphérique)	Corrélations ou modèles
Specchia et Baldi (1977)	Air-eau, glycérol (9 et 29 %), eau + 8-16 ppm surfactant Sphères, cylindres $13,33 < D/d_p < 29,63$	Régime ruisselant $\beta_d = 3,86 Re_L^{0,545} (Ga^*)^{-0,42} \left(\frac{a_s d_p}{\varepsilon} \right)^{0,65}, \quad 3 < Re_L < 470$ Autres régimes $\beta_d = 0,125 \left(\frac{Z}{\Psi^{1,1}} \right)^{-0,312} \left(\frac{a_s d_p}{\varepsilon} \right)^{0,65}, \quad 1 < Z/\Psi^{1,1}, < 500$
Morsi <i>et al.</i> (1982)	Air-cyclohexane, kérosène, polyéthylène glycol Particules catalytiques $D/d_p = 20,83$	Régime ruisselant $\beta_t = 0,66 X^{0,81} / (1 + 0,66 X^{0,81}), \quad 0,1 < X < 80$ Autres régimes $\beta_t = 0,92 (X')^{0,3} / (1 + 0,92 (X')^{0,3}), \quad 0,05 < X' < 100 \text{ (fluides moussants)}$ $\beta_t = 4,83 (X')^{0,58} / (1 + 4,83 (X')^{0,58}) \text{ (fluides visqueux)}$
Rao <i>et al.</i> (1983)	Air-eau Sphères, cylindres, anneaux Raschig $9 < D/d_p < 32$	$\beta_t = c X^b a_s^{1/3}$ $c = 0,40$ et $b = 0,23$ pour le régime ruisselant $c = 0,40$ et $b = 0,27$ pour le régime pulsé $c = 0,38$ et $b = 0,28$ pour le régime à bulles
Clements et Schmidt (1978,1980b)	Air-pétrole silicone Extrudés, cylindres $15,72 < D/d_p < 55$	Fluides non moussants $\varepsilon \beta_d = 0,111 (We_G Re_G / Re_L)^{-0,034}$ Fluides moussants $\beta_d = 0,245 (We_G Re_G / Re_L)^{-0,034}$
Sai et Varma (1988)	Air-eau, 10 %, 20 %, 40 % Glycérine, kérosène <i>n</i> -hexane, CMC Sphères, cylindres, anneaux Raschig $4,74 < D/d_p < 29,43$	Fluides non moussants $\beta_d = 0,325 a_s^{1/3} \left(\frac{Re_L}{Re_G} \right)^{1/3} \left(\frac{\sigma_{eau}}{\sigma_L} \right)^{0,1} \left(\frac{\mu_L}{\mu_{eau}} \right)^{0,5} \left(\frac{\rho_L}{\rho_{eau}} \right)^{0,2}$ Fluides moussants $\beta_d = c \cdot a_s^{1/3} \left(\frac{Re_L}{Re_G} \right)^{1/3} \left(\frac{\sigma_{eau}}{\sigma_L} \right)^{0,8} \left(\frac{\mu_L}{\mu_{eau}} \right)^{0,5} \left(\frac{\rho_L}{\rho_{eau}} \right)^{0,2}$ où $c = 0,245$ pour les régimes ruisselant et pulsé $c = 0,175$ pour le régime moussant $\beta_d = 0,065 a_s^{1/3} G_L^{1/3} \left(\frac{\sigma_{eau}}{\sigma_L} \right)^{0,8} \left(\frac{\mu_L}{\mu_{eau}} \right)^{0,15} \left(\frac{\rho_L}{\rho_{eau}} \right)^{0,2}$ pour le régime moussant pulsé

TABLEAU 6 (suite)

Corrélations du taux de rétention de liquide dans un réacteur à lit fixe arrosé (pression atmosphérique)

Models and correlations for the prediction of liquid holdup in a trickle-bed reactor: atmospheric pressure

Auteurs	Systèmes étudiés (pression atmosphérique)	Corrélations ou modèles
Holub <i>et al.</i> (1992,1993)	Air-eau, pétrole Soyabean Billes de verre 3 mm Extrudés 1,88 mm Sphères poreuses 3,175 mm	Équation de calcul du taux de rétention : $\Psi_L = 1 + \frac{\rho_G}{\rho_L} (\Psi_G - 1)$ où Ψ_L et Ψ_G sont donnés par le modèle de Holub <i>et al.</i> (1993) (cf. tableau 3)
Burghardt <i>et al.</i> (1995)	Eau-air, <i>n</i> -hexane-azote Sphères poreuses $9,53 < D/d_p < 14,82$	$\beta_d = 1,125 \left(\frac{a_s d_p}{\varepsilon} \right)^{0,3} (Ga'_L)^{-0,5} (Re_G + 2,28)^{-0,1}$ $\cdot \operatorname{tgh}(48,9(Ga'_L)^{-1,16} Re_L^{0,41})$ avec $2 < Re_L < 62$, $0 < Re_G < 103$, $51 < Ga'_L < 113$
Benkrid <i>et al.</i> (1997)	Données de Charpentier et Favier (1975), Morsi (1979), Purwasasmita (1985), Sosa (1981), Larachi <i>et al.</i> (1991a, b, c) et Rode <i>et al.</i> (1994)	$\beta_t = C \frac{1}{\varepsilon} \frac{a_{LS}^{0,4} \rho_L^{0,2} j_L^{0,6} \mu_L^{0,2}}{d_p^{0,2}} \left(\frac{\Delta p}{\Delta z} + \rho_L g \right)^{-0,4}$ $a_{LS} = \frac{6(1-\varepsilon)}{d_p} + \frac{4}{D}$ avec C est compris entre 1,8 et 3,2.

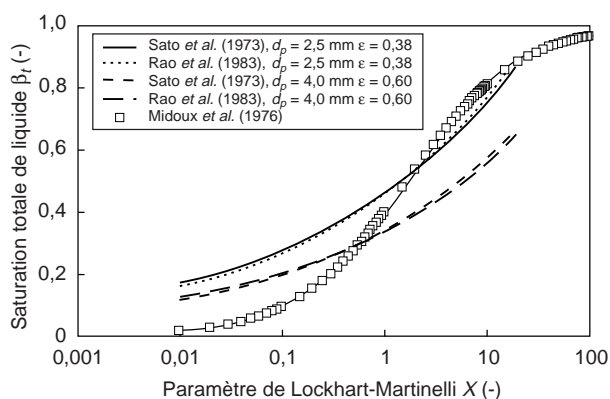


Figure 19

Saturation totale de liquide β_t calculée par les corrélations de type Lockhart-Martinelli en fonction de X .

Total liquid saturation β_t calculated from the Lockhart-Martinelli type correlations versus X .

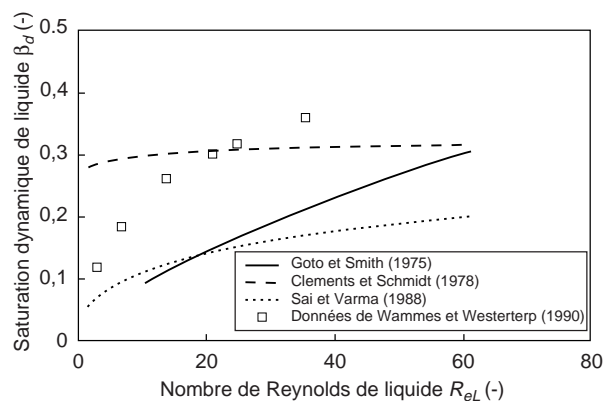


Figure 20

Saturation dynamique de liquide β_d calculée par les corrélations dépendantes des variables de fonctionnement en fonction de Re_L . Confrontation avec des données expérimentales de Wammes et Westertep (1990) : système eau-azote, $p = 1,5$ MPa, $j_G = 0,11$ m/s, $d_p = 3$ mm et $\varepsilon = 0,39$.

Dynamic liquid saturation β_d calculated from the correlations depending on the operating variables versus Re_L . Comparison with the experimental results of Wammes and Westertep (1990): water-nitrogen system, $p = 1.5$ MPa, $j_G = 0.11$ m/s, $d_p = 3$ mm and $\varepsilon = 0.39$.

L'influence de la pression de fonctionnement sur le taux de rétention de liquide dans un réacteur à lit fixe arrosé a été examinée par Wammes *et al.* (1991a, 1991b), Wammes et Westerterp (1990, 1991), Larachi *et al.* (1991a, b, c) et Al-Dahhan et Dudukovic (1994). Les effets de la pression de fonctionnement et de la masse molaire du gaz sur la saturation dynamique de liquide sont mis en évidence dans la figure 21 où sont représentées des données expérimentales de Wammes *et al.* (1991b) obtenues pour les systèmes eau-azote et eau-hélium. La figure 21 montre que pour des vitesses superficielles de gaz et de liquide constantes, la saturation dynamique de liquide décroît lorsque la pression de fonctionnement du réacteur ou/et la masse molaire du gaz augmentent. L'effet de l'augmentation de la pression et/ou de la masse molaire du gaz sur la valeur de la rétention s'explique par la croissance de la masse volumique du gaz ρ_G .

En effet, pour des vitesses superficielles constantes, l'augmentation de ρ_G occasionne une intensification de la force de traînée s'exerçant à l'interface gaz-liquide. Cette dernière conduit à son tour à une accélération du film et donc à une réduction du temps de séjour moyen du liquide dans le réacteur.

La variable physique à prendre en considération est donc la masse volumique du gaz comme le démontre explicitement la figure 22 où sont reprises des données expérimentales d'Al-Dahhan et Dudukovic (1994) obtenues pour les systèmes hexane-azote et hexane-hélium. Les valeurs fixées pour les pressions en hélium et en azote correspondent à des masses volumiques respectives quasi égales. Dans ces conditions, pour un débit massique de liquide constant, la saturation totale de liquide est approximativement la même pour les deux systèmes testés. L'effet des caractéristiques géométriques du lit sur la saturation totale de liquide est mis en évidence dans la figure 23 qui présente des données d'Al-Dahhan et Dudukovic (1994).

En comparant les résultats obtenus pour les sphères et les extrudés poreux ($d_p = 1,52$ mm et 1,99 mm), on note que la saturation totale de liquide est la plus élevée pour le lit de particules de plus petit diamètre en accord avec les résultats obtenus par Sai et Varma (1988) et Larachi *et al.* (1991a). De plus, en comparant les données relatives aux sphères poreuses et non poreuses, on déduit que la saturation totale de liquide est la plus élevée pour le lit de particules poreuses. Cet effet est attribué à la rétention interne de liquide occasionnée par la porosité des particules.

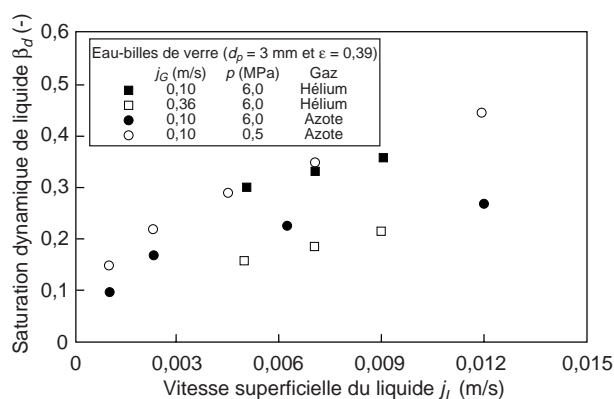


Figure 21

Influence des vitesses superficielles des fluides, de la pression de fonctionnement et de la masse molaire du gaz sur la saturation dynamique de liquide. Résultats expérimentaux de Wammes *et al.* (1991b) : systèmes eau-hélium et eau-azote, billes de verre $d_p = 3$ mm et porosité $\epsilon = 0,39$.

Influences of the superficial velocities of fluids, operating pressure and molar weight of gas on the dynamic liquid saturation. Experimental results of Wammes et al. (1991b): water-helium and water-nitrogen systems, glass beads $d_p = 3$ mm and bed porosity $\epsilon = 0,39$.

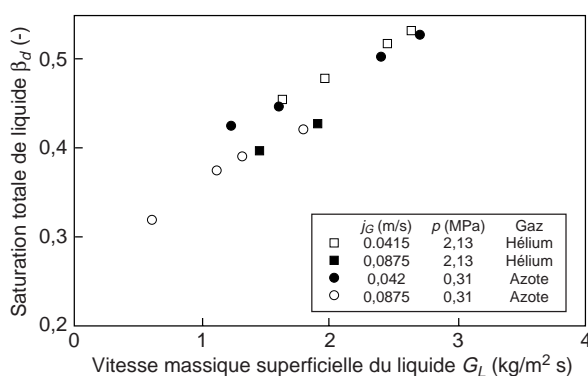


Figure 22

Influence de la masse volumique du gaz sur la saturation totale de liquide. Résultats expérimentaux d'Al-Dahhan et Dudukovic (1994) : systèmes hexane-hélium et hexane-azote, billes de verre $d_p = 1,14$ mm et porosité $\epsilon = 0,392$.

Influence of the gas density on the total liquid saturation. Experimental results of Al-Dahhan and Dudukovic (1994): hexane-helium and hexane-nitrogen systems, glass beads $d_p = 1.14$ mm and bed porosity $\epsilon = 0.392$.

En analysant les résultats expérimentaux obtenus dans les conditions de hautes pressions, on peut retenir les conclusions suivantes.

- Pour une pression de fonctionnement fixée, la saturation de liquide croît avec le débit massique de liquide et décroît lorsque le débit massique de gaz augmente (figs. 21 et 22) en accord avec les observations faites à la pression atmosphérique.
- En absence d'écoulement gazeux ($j_G = 0$) ou pour des très faibles vitesses superficielles de gaz ($j_G < 1$ cm/s), la pression de fonctionnement n'a aucune influence sur la saturation dynamique de liquide pour les systèmes non moussants. Cependant, pour des débits gazeux un peu plus élevés, une croissance de la vitesse superficielle du gaz conduit à une diminution de la saturation dynamique de liquide qui est d'autant plus importante que la pression de fonctionnement du réacteur et le débit de liquide sont élevés. Ce résultat démontre que, même pour des vitesses superficielles de gaz relativement faibles, l'écoulement gazeux a une influence significative sur l'hydrodynamique du réacteur fonctionnant à haute pression en régime ruisselant.
- Pour une pression de fonctionnement fixée, la saturation totale de liquide est beaucoup plus faible pour les systèmes moussants que pour les systèmes non moussants. Cette propriété est démontrée sur la figure 24 reprenant des données de Larachi *et al.* (1991a) obtenues à la pression de

5,1 MPa et pour les systèmes eau-azote (non moussant) et eau + 1% éthanol-azote (moussant). Le phénomène de moussage reste assez mal compris et aucun modèle prenant en compte l'influence de ce phénomène sur l'hydrodynamique n'existe encore. Néanmoins, selon Larachi *et al.* (1991b), la grande stabilité des fines bulles de gaz persistantes sur et entre les particules solides lorsque le liquide mousse produit une diminution de la vitesse relative des fluides. Bien qu'il représente une explication plausible de la faible rétention de liquide dans les systèmes moussants, ce mécanisme demande à être vérifié expérimentalement.

- Pour des débits massiques de gaz et de liquide donnés, la saturation de liquide croît avec la pression de fonctionnement du réacteur. Cet effet est attribué à la diminution du flux de quantité de mouvement gazeux G_G^2/ρ_G qui conduit à une réduction de la force de traînée s'exerçant à l'interface gaz-liquide et donc à une décélération du film de liquide. Ce résultat peut aussi être expliqué en partie par le fait que le gaz occupe dans le réacteur un volume plus faible à cause de l'augmentation de sa masse volumique à débit massique constant.
- Pour des valeurs fixées de la pression de fonctionnement et des débits massiques de gaz et de liquide, la saturation de liquide augmente avec la viscosité dynamique du liquide en accord avec les observations faites à la pression atmosphérique.

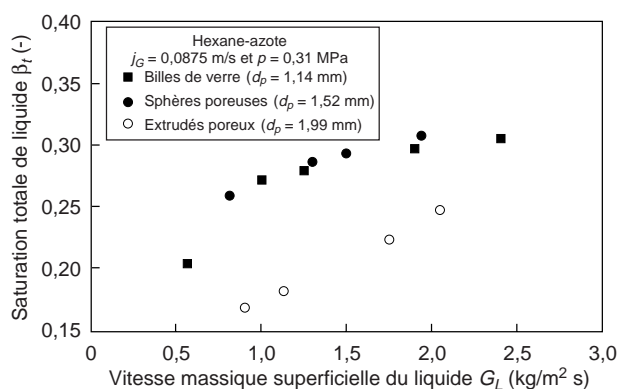


Figure 23

Influence des caractéristiques géométriques du lit granulaire sur la saturation totale de liquide. Résultats expérimentaux d'Al-Dahhan et Dudukovic (1994) : système hexane-azote, $p = 0,31$ MPa et $j_G = 0,0875$ m/s.

Influence of the geometrical characteristics of packed bed on the total liquid saturation. Experimental results of Al-Dahhan and Dudukovic (1994): hexane-nitrogen system, $p = 0,31$ MPa and $j_G = 0,0875$ m/s.

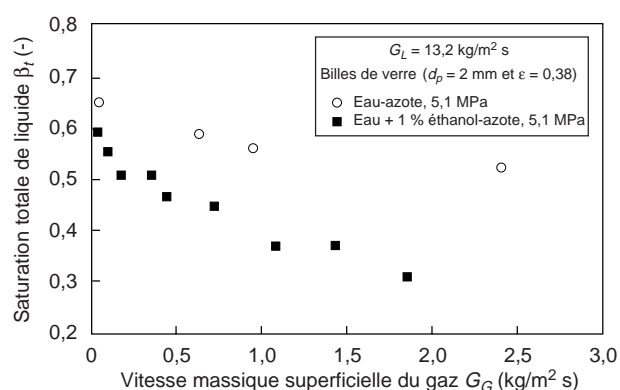


Figure 24

Influence du phénomène de moussage sur la saturation totale de liquide. Résultats expérimentaux de Larachi *et al.* (1991a) : systèmes eau-azote et eau + 1% éthanol-azote, billes de verre $d_p = 2$ mm et porosité $\varepsilon = 0,38$, $p = 5,1$ MPa et $G_L = 13,2$ kg/m²s.

*Influence of the foaming phenomenon on the total liquid saturation. Experimental results of Larachi *et al.* (1991a): water-nitrogen and water + 1% ethanol-nitrogen systems, $p = 5,1$ MPa, $G_L = 13,2$ kg/m²s, glass beads $d_p = 2$ mm and bed porosity $\varepsilon = 0,38$.*

Les résultats expérimentaux évoqués plus haut ont été obtenus essentiellement pour des liquides aqueux et des gaz tels que l'azote et l'hélium, c'est-à-dire pour des systèmes fort différents de ceux utilisés dans l'industrie pétrolière. Afin de combler cette lacune, Fu et Tan (1996) ont réalisé des mesures de taux de rétention total de liquide sur des réacteurs fonctionnant à hautes pressions (entre 1,7 et 7,0 MPa) et à une température de 311 K avec des systèmes hydrocarbures-hydrogène. Le diamètre des particules non poreuses testées a varié entre 0,5 et 1,9 mm. Ces auteurs ont confirmé dans ces conditions les influences significatives de la dimension des grains et de la viscosité dynamique du liquide sur la saturation totale de liquide. On note que Fu et Tan (1996) n'ont pas fait varier la température de fonctionnement dans la mesure où ils ont supposé l'influence de cette variable négligeable. Cette hypothèse, supportée par certaines expériences réalisées sur des réacteurs fonctionnant à haute pression et haute température (Ring et Missen, 1991 ; Tsamatsoulis et Papayannakos, 1994), reste encore à être confirmée au moyen d'études systématiques.

Les études expérimentales effectuées à hautes pressions ont conduit au développement de quelques corrélations du taux de rétention de liquide. Celles-ci sont regroupées dans le

tableau 7. Les corrélations d'Ellman *et al.* (1991), de Larachi *et al.* (1991a) et de Wammes *et al.* (1991b) sont empiriques tandis que les modèles de Holub *et al.* (1993) et d'Al-Dahhan *et al.* (1998) sont fondés sur une approche phénoménologique. Ces modèles ont déjà été évoqués au paragraphe précédent réservé à la perte de pression. La corrélation empirique de β_t développée par Fu et Tan (1996) pour des systèmes hydrogénés dans l'intervalle de pression 1,7-7,0 MPa est également reprise dans le tableau 7. Celle-ci ne prend pas en considération l'influence du gaz. Elle n'est donc valable que dans le domaine restreint des faibles vitesses massiques superficielles de liquide ($G_L < 2 \text{ kg/m}^2 \text{ s}$). Pour des valeurs de G_L plus élevées, l'influence du débit massique de gaz sur β_t ne peut plus être négligée (Rao *et al.*, 1993 ; Wammes *et al.*, 1991a, Larachi *et al.*, 1994). Les valeurs de la saturation de liquide calculées par les trois corrélations empiriques et le modèle de Holub *et al.* (1993) sont comparées avec des données de Wammes *et al.* (1991b) (eau-azote, 6,0 MPa) et avec certaines de Larachi *et al.* (1991a) (eau-azote, 8,1 MPa) respectivement dans les figures 25 et 26.

Les résultats de calcul par la corrélation de Fu et Tan (1996) ne sont pas représentés en raison de son domaine de validité fort restreint.

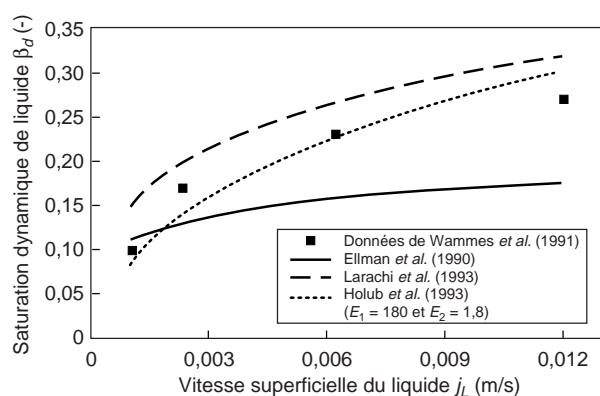


Figure 25

Comparaison des prédictions de la saturation de liquide fournies par les corrélations empiriques développées à hautes pressions et par le modèle de Holub *et al.* (1993) avec des données expérimentales de Wammes *et al.* (1991b) : système eau-azote, billes de verre $d_p = 3 \text{ mm}$ et porosité $\varepsilon = 0,39$; $p = 6,0 \text{ MPa}$ et $j_G = 0,11 \text{ m/s}$.

Comparison of the predictions of liquid saturation given from the empirical correlations for elevated pressures and from the model of Holub *et al.* (1993) with the experimental data of Wammes *et al.* (1991b): water-nitrogen system, glass beads $d_p = 3 \text{ mm}$ and bed porosity $\varepsilon = 0,39$, $p = 6,0 \text{ MPa}$ and $j_G = 0,11 \text{ m/s}$.

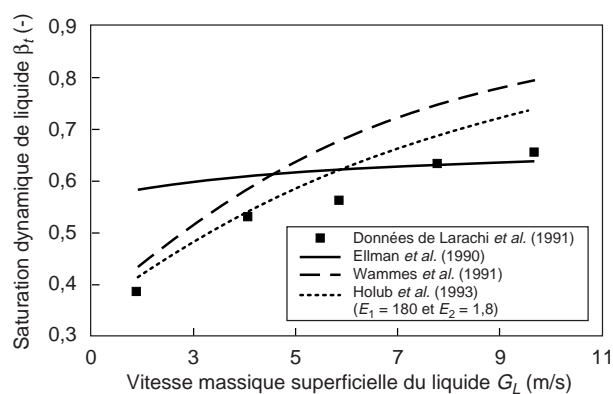


Figure 26

Comparaison des prédictions de la saturation de liquide fournies par les corrélations empiriques développées à hautes pressions et par le modèle de Holub *et al.* (1993) avec des données expérimentales de Larachi *et al.* (1991a) : système eau-azote, billes de verre $d_p = 2 \text{ mm}$ et porosité $\varepsilon = 0,38$, $p = 8,1 \text{ MPa}$ et $G_L = 0,2 \text{ kg/m}^2 \text{ s}$.

Comparison of the predictions of liquid saturation given from the empirical correlations for elevated pressures and from the model of Holub *et al.* (1993) with the experimental data of Larachi *et al.* (1991a): water-nitrogen system, glass beads $d_p = 2 \text{ mm}$ and bed porosity $\varepsilon = 0,38$, $p = 8,1 \text{ MPa}$ and $G_L = 0,2 \text{ kg/m}^2 \text{ s}$.

TABLEAU 7

Modèles et corrélations du taux de rétention de liquide dans un réacteur à lit fixe arrosé (pressions de fonctionnement élevées)

Models and correlations for the prediction of liquid holdup in a trickle-bed reactor: elevated operating pressure

Auteurs	Pression de fonctionnement	Approches
Ellman <i>et al.</i> (1981)	0,1-10 MPa	Empirique
$\beta_d = 10^k, \quad k = 0,001 - \frac{0,42}{\left(X_L^{0,5} Re_L^{-0,3} \left(\frac{a_s d_h}{(1-\varepsilon)} \right)^{0,3} \right)^{0,48}}$		
Wammes <i>et al.</i> (1991b)	0,2-7,5 MPa	Empirique
Système des deux corrélations proposées par Wammes <i>et al.</i> (1991b) (cf. tableau 4)		
Larachi <i>et al.</i> (1991a)	0,2-8,1 MPa	Empirique
$\beta_t = 1 - 10^{-\Gamma}, \quad \Gamma = 1,22 \frac{We_L^{0,15}}{X_G^{0,15} Re_L^{0,2}}$		
Holub <i>et al.</i> (1992, 1993) Al-Dahhan et Dudukovic (1994)	0,31-5 MPa	Phénoménologique
<p>Équation algébrique du taux de rétention : $\Psi_L = 1 + \frac{\rho_G}{\rho_L} (\Psi_G - 1)$</p> <p>où Ψ_L et Ψ_G sont donnés par le modèle de Holub <i>et al.</i> (1993) (cf. tableau 3)</p>		
Fu et Tan (1996)	1,7-7,0 MPa, 311 K	Empirique
$\beta_t = 1,505 Re_L^{0,29} Ga_L^{-0,32} d_h^{-0,22}$ <p>pour $G_L < 2 \text{ kg/m}^2 \text{ s}$, systèmes hydrogénés</p>		
Al-Dahhan <i>et al.</i> (1998)	0,35-5 MPa	Phénoménologique
<p>Équation algébrique du taux de rétention : $\Psi_L = 1 + \frac{\rho_G}{\rho_L} (\Psi_G - 1)$</p> <p>où Ψ_L et Ψ_G sont donnés par le modèle d'Al-Dahhan <i>et al.</i> (1998) (cf. tableau 4)</p>		

Comme les corrélations et les modèles ne prédisent pas les mêmes grandeurs (saturation totale ou dynamique), la connaissance préalable de la saturation statique de liquide β_{stat} est nécessaire pour assurer une base commune de comparaison. Ainsi dans la figure 25, la valeur mesurée par Wammes *et al.* (1991b) de la saturation statique de liquide a été utilisée ($\beta_{stat} = 0,11$) tandis que dans la figure 26, la corrélation de Saez *et al.* (1991) a été employée pour l'évaluation de β_{stat} . Ces résultats montrent de nouveau que les valeurs prédites par les corrélations ne s'accordent pas bien mutuellement, mais les écarts par rapport aux points expérimentaux sont plus faibles que dans le cas de la perte de pression. On note que c'est le modèle de Holub *et al.* qui prédit les résultats de mesures de la rétention de liquide d'une manière la plus satisfaisante.

Comme pour la perte de pression, les valeurs de la saturation de liquide calculées par les trois corrélations et par le modèle de Holub *et al.* (1993) ont été comparées à l'ensemble des données expérimentales obtenues à hautes pressions comportant les résultats de Wammes et Westerterp (1990, 1991), Wammes *et al.* (1991a, 1991b), Larachi *et al.* (1991a) et Al-Dahhan et Dudukovic (1994) (près de 320 points expérimentaux). Les résultats obtenus pour l'erreur relative moyenne associée à chaque corrélation sont regroupés dans le tableau 5. De nouveau, les corrélations d'Ellman *et al.* et de Larachi *et al.* correspondent à des erreurs relatives moyennes de prédiction les plus élevées (autour de 30 %). Par contre, le modèle de Holub *et al.* présente une précision satisfaisante pour le calcul de la saturation de liquide (erreur relative autour de 13 %).

L'amélioration de la prédiction de la perte de pression apportée par le modèle étendu d'Al-Dahhan *et al.* (1998) ne change pratiquement pas la précision du calcul de la saturation de liquide par rapport à celle du modèle original de Holub *et al.* (1993). On peut le voir sur la figure 27 où les valeurs de la saturation totale de liquide calculées par les deux modèles sont comparées avec des données expérimentales d'Al-Dahhan et Dudukovic (1994), obtenues pour le système hexane-azote et pour deux valeurs de la pression de fonctionnement (0,31 et 3,55 MPa). Les valeurs de la saturation de liquide prédites par les deux modèles sont fort proches.

On peut conclure qu'aucune des corrélations empiriques du taux de rétention de liquide développées à hautes pressions ne peut être recommandée lors des calculs de conception des réacteurs à lit fixe industriels. Par contre, le modèle de Holub *et al.* (1993) ou celui d'Al-Dahhan *et al.* (1998), jusqu'à preuve de mieux, peut être utilisé dans les calculs pratiques sans commettre d'erreurs très importantes.

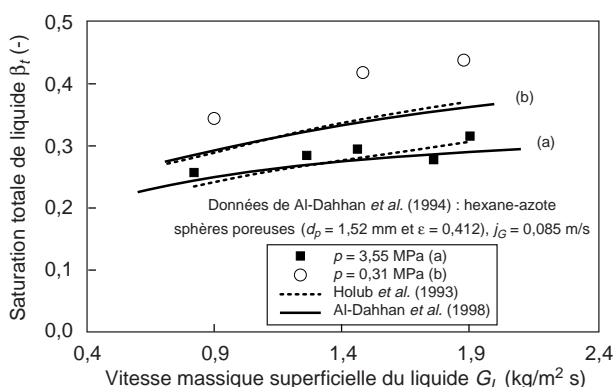


Figure 27

Comparaison des valeurs de la saturation totale de liquide calculées par le modèle étendu d'Al-Dahhan *et al.* (1998) avec celles du modèle original de Holub *et al.* (1993) et avec des données expérimentales d'Al-Dahhan et Dudukovic (1994) : système hexane-azote, sphères poreuses ($d_p = 1,52$ mm et $\varepsilon = 0,412$), $j_G = 0,085$ m/s et $\varepsilon = 0,412$, $j_G = 0,085$ m/s, $E_1 = 260,2$ et $E_2 = 2,48$.

Comparison of the values of total liquid saturation predicted from the extended model of Al-Dahhan *et al.* (1998) and from the model of Holub *et al.* (1993) with the experimental data of Al-Dahhan and Dudukovic (1994): hexane-nitrogen system, porous spheres $d_p = 1.52$ mm and $\varepsilon = 0.412$, $j_G = 0.085$ m/s, $E_1 = 260.2$ and $E_2 = 2.48$.

CONCLUSION

La majeure partie des études expérimentales présentées dans la littérature concernant l'hydrodynamique des réacteurs à lit fixe arrosé a été réalisée dans les conditions de pression et de température ambiantes. Les corrélations et les modèles prédisant la position des courbes de transitions de régimes, la perte de pression et le taux de rétention de liquide ont été développés surtout dans des conditions de pressions de fonctionnement voisines de la pression atmosphérique. Ces méthodes ne peuvent donc être utilisées lors des calculs de dimensionnement des réacteurs à lit fixe industriels fonctionnant dans des domaines de pressions élevées (de l'ordre de 20 à 40 MPa).

Seul un nombre restreint d'études ont été réalisées cette dernière décennie dans des conditions de hautes pressions de fonctionnement. Malheureusement, les corrélations empiriques proposées par les divers auteurs pour prédire dans ces conditions la perte de pression et le taux de rétention de liquide sont restées fort imprécises. De plus, sans souci de cohérence, certains auteurs ont corrélé de manière indépendante ces deux paramètres hydrodynamiques alors qu'ils sont naturellement couplés à travers le bilan de quantité de mouvement. Seul le modèle phénoménologique étendu d'Al-Dahhan *et al.* (1998) semble

interpréter avec une précision raisonnable les résultats de mesures des divers auteurs obtenus en régime ruisselant. Néanmoins, la démarche suivie par ces auteurs reste artificielle puisque les équilibres de forces ont été appliqués à une géométrie simpliste (une fente) sensée représenter le milieu granulaire. Par conséquent, les phénomènes occasionnés par l'hétérogénéité du lit ne pourront pas être pris en considération par cette approche phénoménologique. En absence de formalisme plus précis, ce modèle peut être recommandé pour la prédiction des deux paramètres hydrodynamiques lors des calculs de dimensionnement des réacteurs à lit fixe fonctionnant en régime ruisselant. Enfin, aucun modèle physique n'est proposé pour la détermination de la perte de pression et du taux de rétention de liquide dans les réacteurs fonctionnant en régimes pulsé ou à bulles dans les conditions de hautes pressions. On peut citer des réacteurs d'hydrogénations sélectives des coupes pétrolières C_3 et C_4 qui fonctionnent dans le régime à bulles.

Les modèles de transitions ne sont pas capables de prédire correctement la position de la frontière entre les régimes ruisselant et pulsé, surtout pour les pressions de fonctionnement élevées. Seule la corrélation empirique de Larachi *et al.* (1993) semble prédire cette transition avec une précision acceptable dans un large intervalle de la pression de fonctionnement. Jusqu'à preuve de mieux, cette corrélation est recommandée pour la détermination de la position de la frontière entre les régimes ruisselant et pulsé lors des calculs prédictifs. Par ailleurs, à l'exception du modèle de Ng (1986), la courbe de transition du régime pulsé vers le régime à bulles n'a encore fait l'objet d'aucune modélisation.

Il est nécessaire de disposer de plus de données expérimentales à hautes pressions afin de pouvoir mieux vérifier les prédictions du modèle d'Al-Dahhan *et al.* (1998) et celles de Larachi *et al.* (1993) Ces études expérimentales devraient être réalisées avec des systèmes gaz-liquide dont les propriétés physiques sont proches de celles des milieux réactionnels utilisés dans les réacteurs à lit fixe industriels (par exemple les systèmes hydrocarbures-hydrogène pour les réacteurs de raffinage pétrochimique). De plus, les caractéristiques du lit devraient être aussi représentatives que possible de celles rencontrées dans les réacteurs commerciaux, à savoir des particules catalytiques poreuses et non plus des billes ou des cylindres de verre.

Les réacteurs étudiés dans les laboratoires fonctionnent souvent dans des conditions isothermes et ambiantes. Il serait utile de conduire des études sur des réacteurs pilotes qui fonctionnent dans des conditions adiabatiques afin de pouvoir analyser l'effet de la température sur les caractéristiques hydrodynamiques (couplage thermique-hydrodynamique). Par ailleurs, la plupart des résultats expérimentaux relevant des aspects hydrodynamiques ont été obtenus sur des réacteurs à l'échelle du laboratoire (c'est-à-dire des réacteurs dont le diamètre est resté inférieur à environ 20 cm). Dans ces réacteurs, le diamètre de la colonne correspond à environ

10 à 20 fois le diamètre des particules et les effets de parois sont exacerbés. Il est donc nécessaire d'élargir la gamme de données expérimentales aux réacteurs de type pilote de taille semi-industrielle (c'est-à-dire des réacteurs dont le diamètre est de l'ordre de 40 à 60 cm). Cette étape de validation est indispensable pour le développement d'un formalisme d'extrapolation. De plus, les expériences effectuées sur les réacteurs de taille semi-industrielle permettront de faire apparaître d'autres mécanismes responsables des problèmes de mauvaise distribution des fluides sur une section droite, ces mécanismes n'étant pris en compte par aucun des modèles hydrodynamiques existants. Enfin, ces problèmes d'extrapolation aux grandes tailles de réacteur justifient encore plus la nécessité d'adopter une démarche systématique basée sur les outils de la mécanique des fluides en s'attachant particulièrement à la mise en œuvre des techniques de moyennes et à la description des diverses interactions hydrodynamiques auxquelles sont soumises les trois phases du système.

RÉFÉRENCES

- Al-Dahhan, M. H. et Dudukovic, M.P. (1994) Pressure Drop and Liquid Holdup in High Pressure Trickle-Bed Reactors. *Chem. Eng. Sci.*, **49**, 5681-5698.
- Al-Dahhan, M. H., Larachi, F., Dudukovic, M.P. et Laurent, A. (1997) High-Pressure Trickle-Bed Reactors: a Review. *Ind. Eng. Chem. Res.*, **36**, 3292-3314.
- Al-Dahhan, M.H., Khadilkar, M.R., Wu, Y. et Dudukovic, M.P. (1998) Prediction of Pressure Drop and Liquid Holdup in High-Pressure Trickle-Bed Reactors. *Ind. Eng. Chem. Res.*, **37**, 793-798.
- Baker, O. (1954) Simultaneous Flow of Oil and Gas. *Oil and Gas J.*, **53**, 185-195.
- Baldi, G. (1981) Hydrodynamics of Multiphase Reactors. *Multiphase Chemical Reactors. Design methods, Series E : Applied Sciences*, édité par Rodrigues A.E., Calo, J. M. and Sweed, N. H., **2**, 52, 271-305.
- Benkrid, K., Rode, S. et Midoux, N. (1997) Prediction of Pressure Drop and Liquid Saturation in Trickle-Bed Reactors Operated in High Interaction Regimes. *Chem. Eng. Sci.*, **52**, 4021-4032.
- Blok, J.R. et Drinkenburg, A.A.H. (1982) Hydrodynamic Properties of Pulses in Two-Phase Downflow Operated Packed Columns. *Chem. Eng. J.*, **25**, 89-99.
- Blok, J.R., Varkevisser, J. et Drinkenburg, A.A.H. (1983) Transition to Pulsing Flow, Holdup and Pressure Drop in Packed Columns with Cocurrent Gas-Liquid Downflow. *Chem. Eng. Sci.*, **38**, 687-699.
- Burghardt, A., Bartelmus, G., Jaroszynski, M. et Kolodziej, A. (1995) Hydrodynamics and Mass Transfer in a Three-Phase Fixed-Bed Reactor with Cocurrent Gas-Liquid Downflow. *Chem. Eng. J.*, **58**, 83-99.
- Charpentier, J.C., Prost, C. et le Goff, P. (1969) Chute de Pression pour des écoulements à cocourant dans des colonnes à garnissage arrosé : comparaison avec le garnissage noyé. *Chem. Eng. Sci.*, **24**, 1777-1794.
- Charpentier, J.C. (1979) *Hydrodynamics of Two-Phase Flow through Porous Media*. In *Chemical Engineering of Gas-Liquid-Solid Catalyst Reactions*, L'Homme G.A., éd., Cebedoc, Liège, Belgique.

- Charpentier, J.C. et Favier, M. (1975) Some Liquid Holdup Experimental Data in Trickle-Bed Reactors for Foaming and Nonfoaming Hydrocarbons. *AIChE J.*, **21**, 1213-1218.
- Chou, T.S., Worley, F.L., et Luss Jr, D. (1977) Transition to Pulsed Flow in Mixed-Phase Cocurrent Downflow through a Fixed Bed. *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **16**, 424-427.
- Christensen, G., McGovern, S.J. et Sundaresan, S. (1986) Cocurrent Downflow of Air and Water in a Two-Dimensional Packed Column. *AIChE J.*, **32**, 1677-1689.
- Clements, L.D. (1978) Dynamic Liquid Holdup in Cocurrent Gas-Liquid Downflow in Packed Beds, 1. In *Phase Transport and Reactor Safety*, T.N. Veziroglu et S. Kakac, éd., Hemisphere Publ. Corp., Washington.
- Clements, L.D. et Schmidt, P.C. (1980a) Two-Phase Pressure Drop in Cocurrent Downflow in Packed Beds: Air-Silicone Oil Systems. *AIChE J.*, **26**, 314-317.
- Clements, L.D. et Schmidt, P.C. (1980b) Dynamic Liquid Holdup in Two-Phase Downflow in Packed Beds : Air-Silicone Oil Systems. *AIChE J.*, **26**, 317-319.
- Dankworth, D.C., Kevrekidis, I.G. et Sundaresan, S. (1990) Dynamics of Pulsing Flow in Trickle Beds. *AIChE J.*, **36**, 605-621.
- Dudukovic, M.P., Devanathan, N. et Holub, R. (1991) Multiphase Reactors: Models and Experimental Verification. *Revue de l'Institut français du pétrole*, **46**, 439-465.
- Ellman, M.J. (1988) Caractéristiques des réacteurs triphasés à lit fixe fonctionnant à cocourant vers le bas. *Thèse de doctorat*, Institut national polytechnique de Lorraine, Nancy.
- Ellman, M.J., Midoux, N., Laurent A. et Charpentier, J.C. (1988) A New Improved Pressure Drop Correlation for Trickle-Bed Reactors. *Chem. Eng. Sci.*, **43**, 2201-2206.
- Ellman, M. J., Midoux, N., Wild, G., Laurent, A. et Charpentier, J.C. (1991) A New Improved Liquid Hold-Up Correlation for Trickle-Bed Reactors. *Chem. Eng. Sci.*, **45**, 1677-1684.
- Ergun, S. (1952) Fluid Flow Through Packed Columns. *Chem. Eng. Progress*, **48**, 89-94.
- Fu, M.S. et Tan, C.S. (1996) Liquid Holdup and Axial Dispersion in Trickle-Bed Reactors. *Chem. Eng. Sci.*, **51**, 5357-5361
- Fukushima, S. et Kusaka, K. (1977a) Interfacial Area and Boundary of Hydrodynamic Flow Region in Packed Column with Cocurrent Downward Flow. *J. Chem. Eng. Japan*, **10**, 461.
- Fukushima, S. et Kusaka, K. (1977b) Liquid-Phase Volumetric and Mass Transfer Coefficient, and Boundary of Hydrodynamic Flow Region in Packed Column with Cocurrent Downward Flow, *J. Chem. Eng. Japan*, **10**, 468.
- Gianetto, A., Baldi, G. et Specchia, V. (1970) Absorption in Packed Towers with Concurrent High Velocity Flows. I- Interfacial Areas. *Quad. Ing. Chim. Ital.*, **6**, 125.
- Gianetto, A., Baldi, G., Specchia, V. et Sicardi, S. (1978) Hydrodynamics and Solid-Liquid Contacting Effectiveness in Trickle-Bed Reactors. *AIChE J.*, **24**, 1087-1104.
- Gianetto, A. et Silveston, P.L. (1986) éd., *Multiphase Chemical Reactors: Theory, Design, Scale-Up*, Hemisphere Publishing Corp., New York.
- Gianetto A. et Specchia, V. (1992) Trickle-Bed Reactors: State of the Art and Perspectives. *Chem. Eng. Sci.*, **47**, 3197- 3213.
- Goto, S. et Smith, J.M. (1975) Trickle-Bed Reactor Performance. *AIChE J.*, **21**, 706-713.
- Grosser, K., Carbonell, R.G. et Sundaresan, S. (1988) Onset of Pulsing in Two-Phase Cocurrent Downflow Through a Packed Bed. *AIChE J.*, **34**, 1850-1860.
- Hanika, J. et Stanek, V. (1986) Operation and Design of Trickle Bed Reactors. *Handbook of Heat and Mass Transfer: Mass Transfer and Reactor Design*. Nicholas P. Cheremisinoff, éd., Gulf Publishing Co., **2**, Houston, 1029-1080.
- Hasseni, W., Laurent, A., Midoux, N. et Charpentier, J.C. (1987a) Régimes d'écoulement dans un réacteur catalytique à lit fixe arrosé fonctionnant sous pression (0,1-10 Mpa) à cocourant de gaz et de liquide vers le bas. *Entropie*, **137**, 127-133.
- Hasseni, W., Laurent, A., Midoux, N. et Charpentier, J.C. (1987b) Hydrodynamics of a Trickle Bed Reactor Operating under Pressure (0-10 MPa): Flow Regimes and Pressure Drop. *CHISA '87 Session 17 : Gas-Liquid Packed Bed*, Prague.
- Herskowitz, M. et Smith, J.M., 1983, Trickle-Bed Reactors : a Review. *AIChE J.*, **29**, 1-18.
- Hochman, J.M. et Effron, E. (1969) Two-Phase Cocurrent Downflow in Packed Beds. *Ind. Eng. Chem. Fund.*, **8**, 63-71.
- Hofmann, H. (1977) Hydrodynamics, Transport Phenomena, and Mathematical Models in Trickle Bed Reactors. *Int. Chem. Eng.*, **17**, 19-28.
- Hofmann, H. (1978) Multiphase Catalytic Packed Reactors. *Catal. Rev. Sci.*, **17**, 71-117.
- Holub, R.A., Dudukovic, M.P. et Ramachandran, P.A. (1992) A Phenomenological Model for Pressure Drop, Liquid Holdup, and Flow Regime Transition in Gas-Liquid Trickle Flow. *Chem. Eng. Sci.*, **47**, 2343-2348.
- Holub, R.A., Dudukovic, M.P. et Ramachandran, P.A. (1993) Pressure Drop, Liquid Holdup, and Flow Regime Transition in Trickle Flow. *AIChE J.*, **39**, 302-321.
- Horowitz, G.I., Cukierman, A.L. et Cassanello, M.C. (1997) Flow Regime Transition in Trickle Beds Packed with Particles of Different Wetting Characteristics-Check-Up on New Tools. *Chem. Eng. Sci.*, **52**, 3747-3755.
- Hutton, B.E.T. et Leung, L.S. (1974) Cocurrent Gas-Liquid Flow in Packed Columns. *Chem. Eng. Sci.*, **29**, 1681-1685.
- Iliuta, I., Thyron, F.C. et Muntean, O. (1996) Hydrodynamic Characteristics of Two-Phase Flow Through Fixed Beds: Air/Newtonian and Non-Newtonian Liquids. *Chem. Eng. Sci.*, **51**, 4987-4995.
- Iliuta, I. et Thyron, F.C. (1997) Flow Regimes, Liquid Holdups and Two-Phase Pressure Drop for Two-Phase Cocurrent Downflow and Upflow Through Packed Beds: Air/Newtonian and Non-Newtonian Liquid Systems. *Chem. Eng. Sci.*, **52**, 4045-4053.
- Kan, K.M. et Greenfield, P.F. (1978) Multiple Hydrodynamic States in Cocurrent Two-Phase Downflow through Packed Beds. *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **17**, 482-485.
- Kan, K.M. et Greenfield, P.F. (1979) Pressure Drop and Holdup in Two-Phase Cocurrent Trickle Flows through Beds of Small Particles. *Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev.*, **18**, 760.
- Kantzas, A. (1994) Computation of Holdups in Fluidized and Trickle Beds by Computer-Assisted Tomography. *AIChE J.*, **40**, 1254-1261.
- Kapitza, P.L. (1965) *Wave Flow of Thin Layers of a Viscous Fluid*. Ouvrage collectif : P.L. Kapitza, D. ter Haar, éd., Pergamon Press, Oxford.
- Krieg, D.A., Helwick, J.A., Dillon, P.O. et McCreedy, M.J. (1995) Origin of Disturbances in Cocurrent Gas-Liquid Packed Bed Flows. *AIChE J.*, **41**, 1653-1666.
- Kushalkar, K.B. et Pangarkar, V.G. (1990) Liquid Holdup and Dispersion in Packed Columns. *Chem. Eng. Sci.*, **45**, 759-763.
- Larachi, F. (1991) Les réacteurs triphasiques à lit fixe à écoulement à cocourant vers le bas et vers le haut de gaz et de liquide. Étude de l'influence de la pression sur l'hydrodynamique et le transfert de matière gaz-liquide. *Thèse de doctorat*, Institut national polytechnique de Lorraine, Nancy.

- Larachi, F., Laurent, A., Midoux, N. et Wild G. (1991a) Experimental Study of a Trickle-Bed Reactor Operating at High Pressure: Two-Phase Pressure Drop and Liquid Saturation. *Chem. Eng. Sci.*, **46**, 1233-1246.
- Larachi, F., Laurent, A., Wild, G. et Midoux, N. (1991b) Liquid Saturation Data in Trickle-Beds Operated under Elevated Pressure. *AIChE J.*, **37**, 1109-1112.
- Larachi, F., Laurent, A., Wild, G. et Midoux, N. (1991c) Some Experimental Liquid Saturation Results in Fixed-Bed Reactors Operated under Elevated Pressure in Cocurrent Upflow and Downflow of the Gas and the Liquid. *Ind. Eng. Chem. Res.*, **30**, 2404-2410.
- Larachi, F., Laurent, A., Wild, G. et Midoux, N. (1993) Effet de la pression sur la transition ruisselant-pulsé dans les réacteurs catalytiques à lit fixe arrosé. *Can. J. Chem. Eng.*, **71**, 319-321.
- Larachi, F., Wild, G., Laurent, A. et Midoux, N. (1994) Influence of Gas Density on the Hydrodynamics of Cocurrent Gas-Liquid Upflow Fixed Bed Reactors. *Ind. Eng. Chem. Res.*, **33**, 519.
- Lazzaroni, C.L., Keselman, H.R. et Figoli, N.S. (1989) Trickle Bed Reactors. Multiplicity of Hydrodynamic States. Relation Between the Pressure Drop and the Liquid Holdup. *Ind. Eng. Chem. Res.*, **28**, 119-121.
- Larkins, R.P., White, R.R. et Jeffrey D.W. (1961) Two-Phase Concurrent Flow in Packed Beds. *AIChE J.*, **7**, 231-239.
- Latifi, M.A., Rode, S., Midoux, N. et Storck, A. (1992) Hydrodynamic Study of a Trickle-Bed Reactor by Means of Microelectrodes: Analysis of the Probability Densities. *Chem. Eng. Sci.*, **47**, 2331-2336.
- L'Homme, G.A. (1979) *Introduction to the Applied Physical Chemistry and Chemical Engineering Problems Raised by Gas-Liquid-Solid Catalyst Reactions and Reactors, Chemical Engineering of Gas-Liquid-Solid Catalyst Reactions*. Éd. L'Homme G.A., Cebedoc, Liège.
- Levec, J., Saez, A.E. et Carbonell, R.G. (1986) The Hydrodynamics of Trickling Flow in Packed Beds. II: Experimental observations, *AIChE J.*, **32**, 369-380.
- Lockhart, R.W. et Martinelli, R.C. (1949) Proposed Correlation of Data for Isothermal Two-Phase, Two-Component Flow in Pipes. *Chem. Eng. Progress*, **45**, 39-48.
- Matsuura, A., Akehata, T. et Shirai, T. (1977) Friction Factor of Gas-Liquid Concurrent Downflow through Packed Beds. *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **3**, 122-126.
- Matsuura, A., Akehata, T. et Shirai, T. (1979a) Flow Pattern of Cocurrent Gas-Liquid Downflow in Packed Beds. *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, **5**, 167.
- Matsuura, A., Akehata, T. et Shirai, T. (1979b) Correlation for Dynamic Holdup in Packed Beds with Cocurrent Gas-Liquid Downflow. *J. Chem. Eng. Japan*, **12**, 263.
- Mc Donald, L.F., El-Sayed, M.S., Mow, K. et Dullien, F.A.L. (1979) Flow through Porous Media-The Ergun Equation Revisited. *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **18**, 199-208.
- Midoux, N., Favier, M. et Charpentier, J.C. (1976) Flow Pattern, Pressure Loss and Liquid Holdup Data in Gas-Liquid Downflow Packed Beds with Foaming and Nonfoaming Hydrocarbons. *J. Chem. Eng. Japan*, **9**, 350-356.
- Morsi, B.I. (1979) Contribution à l'étude de l'hydrodynamique et du transfert de matière dans un réacteur gaz-liquide catalytique à lit fixe fonctionnant à cocourant vers le bas. *Thèse de doctorat, INPL, Nancy*.
- Morsi, B.I., Midoux, N. et Charpentier, J.C. (1978) Flow Patterns and some Holdup Experimental Data in Trickle-Bed Reactors for Foaming, Nonfoaming and Viscous Organic Liquids. *AIChE J.*, **24**, 357-360.
- Morsi, B.I., Midoux, N., Laurent, A. et Charpentier, J.C. (1982) Hydrodynamics and Interfacial Areas in Downward Cocurrent Gas-Liquid Flow through Fixed Beds. Influence of the Nature of the Liquid. *Int. Chem. Eng.*, **22**, 142-151.
- Ng, K. M. (1986) A Model for Regime Transitions in Cocurrent Down-Flow Trickle-Bed Reactors. *AIChE J.*, **32**, 115-122.
- Ng, K.M. et Chu, C.F. (1987) Trickle-Bed Reactors. *Chem. Eng. Progress*, **83**, 55-63.
- Purwasasmita, M. (1985) Contribution à l'étude des réacteurs gaz-liquide à lit fixe fonctionnant à cocourant vers le bas à fortes vitesses du gaz et du liquide. *Thèse de doctorat, INPL, Nancy*.
- Ramachandran, P.A. et Chaudhri, R.V. (1983) *Three-Phase Catalytic Reactors*, Gordon and Breach, New York.
- Rao, V.G. et Drinkenburg, A.A.H. (1985) A Model for Pressure Drop in Two-Phase Gas-Liquid Downflow through Packed Columns. *AIChE J.*, **31**, 1010-1017.
- Rao, V.G., Ananth, M.S. et Varma, Y.B.G. (1983) Hydrodynamics of Two-Phase Cocurrent Downflow through Packed Beds (parties I et II). *AIChE J.*, **29**, 467-483.
- Ratnam, G.S.V., Ananth, M.S. et Varma, Y.B.G. (1993) A Model for Pressure Drop in Gas-Liquid Cocurrent Downflow through Packed Beds. *Chem. Eng. J.*, **51**, 19-28.
- Reinecke, N. et Mewes, D. (1997) Investigation of the Two-Phase Flow in Trickle-Bed Reactors Using Capacitance Tomography. *Chem. Eng. Sci.*, **52**, 2111-2127.
- Rode, S., Midoux, N., Latifi, M.A. et Storck, A. (1994) Multiple Hydrodynamic States in Trickle Beds Operating in High-Interaction Regimes: Liquid Saturation and Flow Regime Transitions. *Chem. Eng. Sci.*, **49**, 2535-2540.
- Saez, A.E. et Carbonell, R.G. (1985) Hydrodynamic Parameters for Gas-Liquid Cocurrent Flow in Packed Beds. *AIChE J.*, **31**, 52-62.
- Saez, A.E., Carbonell, R.G. et Levec, J. (1986) The Hydrodynamics of Trickling Flow in Packed Beds. Part I: Conduit Models. *AIChE J.*, **32**, 353-368.
- Saez, A.E., Yépez, M.M., Cabrera, C. et Soria, E.M. (1991) Static Liquid Holdup in Packed Beds of Spherical Particles. *AIChE J.*, **37**, 1733-1736.
- Sai, P.S.T. et Varma, Y.B.G. (1987) Pressure Drop in Gas-Liquid Downflow through Packed Beds. *AIChE J.*, **33**, 2027-2036.
- Sai, P.S.T. et Varma, Y.B.G. (1988) Flow Pattern of the Phases and Liquid Saturation in Gas-liquid Cocurrent Downflow through Packed Beds. *Can. J. Chem. Eng.*, **66**, 353-360.
- Saroha, A.K. et Nigam, K.D.P. (1996) Trickle Bed Reactors. *Reviews in Chem. Eng.*, **12**, 207-347.
- Sato, Y., Hirose, T., Takahashi, F., Toda M. et Hashiguchi Y. (1973a) Flow Pattern and Pulsation Properties of Cocurrent Gas-liquid Downflow in Packed Beds. *J. Chem. Eng. Japan*, **6**, 315-319.
- Sato, Y., Hirose, T., Takahashi, F. et Toda M. (1973b) Pressure Loss and Liquid Holdup in Packed Bed Reactor with Cocurrent Gas-Liquid Downflow. *J. Chem. Eng. Japan*, **6**, 147-152.
- Satterfield, C. N. (1975) Trickle Bed Reactors. *AIChE J.*, **21**, 209-228.
- Scheidegger, A.E. (1974) *The Physics of Flow through Porous Media*, 3^e éd., univ. de Toronto Press.
- Shah, Y.T. (1979) *Gas-Liquid-Solid Reactor Design*. McGraw-Hill. New York.
- Shulman, H.L., Ullrich, C.F. et Wells, N. (1955) Performance of Packed Columns. I: Total, Static, and Operating Holdups. *AIChE J.*, **1**, 247.
- Sicardi, S., Gerhard, H. et Hofmann, H. (1979) Flow Regime Transition in Trickle-Bed Reactors. *Chem. Eng. J.*, **18**, 173-182.

- Sicardi, S. et Hofmann, H. (1980) Influence of Gas Velocity and Packing Geometry on Pulsing Inception in Trickle Bed Reactors. *Chem. Eng. J.*, **20**, 251-253.
- Sosa, J.A.P. (1981) Ermittlung wichtiger Fluidodynamischer Grössen bei Rieselreaktoren mit den Systemen Wasser-Luft und Cyclohexen-Kohlendioxid. *Thèse*, Erlangen, Allemagne.
- Specchia, V. et Baldi, G. (1977) Pressure Drop and Liquid Holdup for Two Phase Concurrent Flow in Packed Beds. *Chem. Eng. Sci.*, **32**, 515-523.
- Specchia, V., Sicardi, S. et Gianetto, A. (1974) Absorption in Packed Towers with Cocurrent upward Flow. *AIChE J.*, **20**, 646-653.
- Sweeney, D.E. (1967) A Correlation for Pressure Drop in Two-phase Cocurrent Flow in Packed Beds. *AIChE J.*, **13**, 663-669.
- Talmor, E. (1977) Two-Phase Downflow through Catalyst Beds. Parties I et II, *AIChE J.*, **23**, 868-878.
- Tosun, G. (1984a) A Study of Cocurrent Downflow of Nonfoaming Gas-Liquid Systems in a Packed Bed. 1. Flow Regimes : Search for a Generalized Flow Map. *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **23**, 29-35.
- Tosun, G. (1984b) A Study of Cocurrent Downflow of Nonfoaming Gas-Liquid Systems in a Packed Bed. 2. Pressure Drop: Search for a Correlation. *Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev.*, **23**, 35-39.
- Trambouze, P. (1991) Multiphase Catalytic Reactors in the Oil Industry : an Introduction. *Revue de l'Institut français du pétrole*, **46**, 433-437.
- Tukac, V. et Hanika, J. (1992) Influence of Catalyst Particles Orientation on the Pressure Drop and the Liquid Dispersion in the Trickle Bed Reactor. *Chem. Eng. Sci.*, **47**, 2227-2232.
- Turpin, J.L. et Huntington, R.L. (1967) Prediction of Pressure Drop for Two-phase, Two-component Concurrent Flow in Packed Beds. *AIChE J.*, **13**, 1196-1202.
- Wammes, W.J.A., Mechielsen, S.J. et Westerterp, K.R. (1990) The Transition Between Trickle Flow and Pulse Flow in a Cocurrent Gas Liquid Trickle-Bed Reactor at Elevated Pressures. *Chem. Eng. Sci.*, **45**, 3149-3158.
- Wammes, W. J. A. et Westerterp, K. R. (1990) The Influence of the Reactor Pressure on the Hydrodynamics in a Cocurrent Gas-liquid Trickle-Bed Reactor. *Chem. Eng. Sci.*, **45**, 2247-2254.
- Wammes, W. J.A. et Westerterp, K. R. (1991) Hydrodynamics in a Pressurized Cocurrent Gas-Liquid Trickle-Bed Reactor. *Chem. Eng. Technol.*, **14**, 406-413.
- Wammes, W.J.A., Mechielsen, S.J. et Westerterp, K.R. (1991a) The Influence of Pressure on the Liquid Hold-Up in a Cocurrent Gas-Liquid Trickle-bed Reactor Operating at Low Gas Velocities. *Chem. Eng. Sci.*, **46**, 409-417.
- Wammes, W.J.A., Middelkamp, J., Huisman, W.J., deBaas, C.M. et Westerterp, K.R. (1991b) Hydrodynamics in a Cocurrent Gas-liquid Trickle Bed at Elevated Pressures. *AIChE J.*, **37**, 1849-1862.
- Weekman, V.W. et Myers, J.E. (1964) Fluid-Flow Characteristics of Concurrent Gas-Liquid Flow in Packed Beds. *AIChE J.*, **10**, 951-957.
- Wild, G., Larachi, F. et Laurent, A. (1991) The Hydrodynamic Characteristics of Cocurrent Downflow and Cocurrent Upflow Gas-Liquid-Solid Catalytic Fixed Bed Reactors: the Effect of Pressure. *Revue de l'Institut français du pétrole*, **46**, 467-490.
- Wijffels, Verloop, J.B. et Zuiderweg, F.J. (1974) Wetting of Catalyst Particles under Trickle Flow Conditions. *ACS Monograph Ser.*, **135**, 151-163.
- Yang, X., Wild, G. et Euzen, J.P. (1992) A Comparison of the Hydrodynamics of Packed Bed Reactors with Cocurrent Upflow and Downflow of Gas and Liquid. *Chem. Eng. Sci.*, **47**, 1323-1325.
- Zhukova, T., Pisarenko, B.V.N. et Kafarov, V.V. (1990) Modeling and Design of Industrial Reactors with a Stationary Bed of Catalyst and Two-phase Gas-liquid Flow-A Review. *Int. Chem. Eng.*, **30**, 57-102.