

# Lits fluidisés pour l'industrie chimique Extrapolation et amélioration des catalyseurs

R. Botton

32, rue Garibaldi, 69006 Lyon - France

## Deuxième partie : Stratégie n'utilisant que des expériences de laboratoire

**Résumé** — Les unités de production en lits fluidisés catalytiques sont apparues vers 1942 dans l'industrie pétrolière et vers 1960 dans l'industrie chimique. On se limitera ici au problème de l'extrapolation des lits fluidisés catalytiques pour l'industrie chimique, qui exigent de très hautes performances (> 99 % de conversion). Leur mise au point a, dans le passé, nécessité l'exploitation sur des sites industriels de coûteux pilotes de 0,5 m de diamètre et de plus de 10 m de hauteur. Nous montrerons que ces pilotes peuvent être évités et que le passage direct du laboratoire à l'échelle industrielle est réalisable. Cette possibilité offre en plus une méthode simple pour améliorer les catalyseurs des unités industrielles. Elle ouvre aussi cette technique, très appréciée en production, aux produits de petit tonnage. Cet article comporte trois parties :

- La première\* exposait les problèmes majeurs posés par l'extrapolation, puis résumait les études effectuées. Les travaux d'extrapolation relatifs à deux procédés effectués avec des pilotes étaient ensuite présentés, à titre d'exemples. De ces travaux étaient déduites les performances que l'on peut espérer obtenir avec un réacteur catalytique à lit fluidisé, ainsi que les règles de tendances à suivre pour y parvenir.
- La deuxième partie, présentée ci-après et intitulée *Stratégie n'utilisant que des expériences de laboratoire*, propose une stratégie expérimentale permettant d'obtenir en laboratoire les informations nécessaires pour passer directement à l'échelle industrielle avec des expériences suggérées en partie par les résultats exposés dans le premier article. Les relations expérimentales établies lors de ces études montrent que les propriétés d'un lit fluidisé ne dépendent (mis à part quelquefois le diamètre du réacteur) que d'un paramètre appelé « vitesse minimum de fluidisation de comportement ».
- La troisième partie, présentée ci-après, est intitulée *Études théoriques, réalités expérimentales, suggestions*. Les bulles des lits fluidisés ont fait l'objet de très nombreux travaux, dont les résultats sont très souvent explicités sous la forme de modèles mécanistiques à un paramètre (diamètre des bulles). Pour confronter ces modèles à l'expérience, une relation est établie entre le diamètre des bulles et la vitesse minimum de fluidisation de comportement. Des suggestions sont alors faites pour améliorer les modèles, et l'on propose des conclusions générales sur les lits fluidisés.

Mots-clés : lits fluidisés catalytiques, extrapolation, amélioration des catalyseurs, modèles, réacteurs.

**Abstract** — *Fluidized Beds in Chemical Industry. Scale-up and Catalysts Improvement* — The first catalytic fluidized beds appear near 1942 in petroleum industry and near 1960 in chemical industry. We only consider here very high-performance chemical fluidized bed reactors (> 99%).

*In the past, they were developed through the use of very expensive pilot plants of about 0.5-m-diameter and 10-m-high. We will demonstrate that direct scale-up from laboratory data is possible. This possibility*

gives also a simple method to improve catalysts used in operating units and opens fluidized bed technique to products that need only low-range production. Presentation is made within three parts:

- In the first, “Studies, Models, Learning from Pilot Plants\*”: after a description of the major scale-up problems, studies to solve them were summarized. Then scale-up works of two processes with the use of about 0.5-m-diameter pilot plant were given. From the results, it was deduced the possible performances of a catalytic fluidized bed and how to operate to obtain them.
- In the second, “Scale-up with Only Laboratory Data,” it is experimentally demonstrated that the information’s scale-up can be obtained in a laboratory. A strategy to obtain them is suggested. Another result of these experimental studies is that all physical properties of catalytic fluidized bed depends on only one parameter called “compartment incipient fluidization velocity.”
- In the third, “Theoretical Studies, Experimental Reality, Suggestions,” results of theoretical studies about bubbles of the fluidized beds are summarized. Results are often given through one-parameter mechanistic models. This parameter is the bubble diameter. To confront these mechanistic models to experiments, a relation is established between the bubble diameter and the compartment incipient velocity fluidization. Suggestions to improve bubble models are suggested and general conclusions about fluidized beds are given.

Keywords: catalytic fluidized bed, scale-up, improvement of catalysts, models, reactors.

\* Première partie : Oil & Gas Science and Technology - Revue IFP (1999), 54, 5, 619-640.

First part: Oil & Gas Science and Technology - Revue IFP (1999), 54, 5, 619-640.

## NOMENCLATURE

Le système d’unités de base utilisé est le système SI (kg, m, s).

À noter : vitesse superficielle = débit par unité de section de l’appareil.

$C_o, C_S$	concentrations du réactif à l’entrée et à la sortie du lit ( $\text{mol}/\text{m}^3$ )	$E_o$	coefficient de dispersion axial du gaz de la phase dense
$dp$	diamètre moyen des particules : $dp = 1/\sum x_i/dp_i$ ( $\mu\text{m}$ )	$f_b, f_d, f_m$	fraction volumique du lit occupée par les bulles, le gaz de la phase dense et le solide : $f_b + f_d + f_m = 1$
$da_p$	densité apparente des particules	$f_B$	fréquence des bulles à $h_{so}$ ( $\text{s}^{-1}$ )
$dp_i$	diamètre d’une particule ( $\mu\text{m}$ )	$f_{BP}$	fréquence des bulles stabilisée par rapport à $U - U_o$ ( $\text{s}^{-1}$ )
$dp_o$	ouverture de tamis ( $\mu\text{m}$ )	$g$	accélération de la pesanteur ( $\text{m}/\text{s}^2$ )
$dp_{10}$	ouverture du tamis qui laisse passer 10 % (en poids) d’une poudre ( $\mu\text{m}$ )	$h$	hauteur du lit (m)
$dp_{50}$	ouverture du tamis qui laisse passer 50 % (en poids) d’une poudre ( $\mu\text{m}$ )	$h_b, h_c$	hauteur du lit à $V_b$ et $V_c$ (m)
$D_b$	diamètre apparent des bulles observées (m ou cm)	$h_o$	hauteur du lit en phase dense (volume par unité de section de lit) (m)
$D_B$	diamètre de la sphère de même volume que la bulle considérée (m)	$h_{mf}, h_r$	hauteurs du lit à $U = U_{mf}$ et $U = 0$ (m)
$D_{BM}$	diamètre de comportement des bulles dans un ensemble de bulles (m)	$h_S$	hauteur du lit en solide (volume de solide à porosité nulle par unité de section de lit) (m)
$D_{DO}$	coefficient axial de dispersion de la phase dense par unité de section de lit et unité de hauteur de phase dense ( $\text{m}^2/\text{s}$ )	$h_{so}$	distance au distributeur d’une sonde capacitive (m)
$D_G$	coefficient de diffusion moléculaire du gaz traceur ( $\text{m}^2/\text{s}$ )	$H_{OK}, H_{OE}, H_{OR}$	hauteur d’unité de transfert, de dispersion et de réaction mesurée en hauteur de phase dense :
$D_T$	diamètre de l’appareil ou du lit fluidisé (m ou cm)	$k_G$	$H_{OK} = (U - U_o)/K_o, H_{OE} = f_d E_o / (U - U_o), H_{OR} = (U - U_o)/k_o$ (m)
		$K_{be}$	transfert de masse par unité de surface de bulle ( $\text{m}/\text{s}$ )
			coefficient global de transfert entre le gaz des bulles et celui de la phase dense par unité de volume du gaz des bulles ( $\text{s}^{-1}$ )

$k_o$	constante cinétique (réaction du premier ordre) relative à l'unité de volume de phase dense ( $s^{-1}$ )	$\varphi$	fraction du gaz du lit sous forme de bulles : $\varphi = (h - h_o)/(h - h_s)$
$K_o$	coefficient de transfert de masse entre le gaz des bulles et celui de la phase dense par unité de volume de phase dense ( $s^{-1}$ )	$\varepsilon$	fraction du volume du lit occupé par le gaz
$N_{OK}, N_{OE}, N_{OR}$	nombre d'unités de transfert, de dispersion et de réaction pour le lit : $N_{OK} = h_o/H_{OK}, N_{OE} = h_o/H_{OE}, H_{OR} = h_o/H_{OR}$		
$R$	fraction de $C_o$ transformée chimiquement : $R = (C_o - C_s)/C_o$		
$S$	constante de temps de décroissance de $C_s$ (traceurs) pour $C_s < U$ (vitesse superficielle du gaz dans le lit) (m/s)		
$U$	vitesse superficielle du gaz dans le lit (m/s)		
$U_A$	vitesse des bulles (m/s)		
$U_{BM}$	vitesse des bulles d'un ensemble de bulles par rapport à la phase dense (m/s)		
$U_{BT}$	vitesse dite de pistonnage définie par : $U_{BT} = 0,35(g D_T)^{0,5}$ (m/s)		
$U_{BX}$	coefficient d'expansion du lit : $h_o/U_{BX} = (h - h_o)/(U - U_o)$ (m/s)		
$U_{mf}$	vitesse superficielle du gaz au minimum de fluidisation (cm/s)		
$U_o$	vitesse superficielle du gaz dans la phase dense (cm/s ou m/s)		
$U_S$	vitesse de descente de la phase dense (m/s)		
$V_b$	vitesse superficielle de disparition des bulles (cm/s)		
$V_c$	vitesse superficielle de coalescence (cm/s)		
$x_i$	fraction pondérale des particules de diamètre $d_{pi}$		

## SYMBOLES GRECS

$\alpha$	volume de phase dense entraîné par une bulle à sa propre vitesse par unité de volume du gaz de la bulle
$\beta$	fraction du débit qui s'écoule par les bulles : $\beta = (U - U_o)/U$
$\rho_d$	masse spécifique de la phase dense ( $kg/m^3$ ou $g/cm^3$ )
$\rho_g$	masse spécifique du gaz ( $kg/m^3$ ou $g/cm^3$ )
$\rho_p$	masse spécifique apparente des particules ( $kg/m^3$ ou $g/cm^3$ )
$\mu_d$	viscosité dynamique de la phase dense (Pa ou $kg/ms$ )
$\mu_d/\rho_p$	viscosité cinématique de la phase dense ( $st = 10^{-4} m^2/s$ )
$\mu_g$	viscosité dynamique du gaz (P ou $kg/m \cdot s$ )
$\theta$	temps normé par rapport au temps de séjour moyen : $\theta = t/\theta_m$
$\theta_B$	temps de séjour moyen de la phase bulle dans le lit (s)
$\theta_m$	temps de séjour moyen des gaz dans le lit : $\theta_m = (h - h_s)/U$ (s)

## INTRODUCTION

Les lits fluidisés de l'industrie chimique exigent l'obtention de très hauts taux de transformation (> 99 %) par passe. Leurs extrapolations ont nécessité, pour la résolution conjointe de problèmes de contact gaz/solide et de catalyse, l'exploitation de pilotes de 0,5 à 0,6 m de diamètre et de plus de 10 m de haut. Éviter un tel pilote exige de savoir prévoir au laboratoire les performances d'un catalyseur donné dans une unité industrielle. Les études présentées ci-dessous montrent que cette possibilité existe. Leur présentation est faite en deux parties.

Si l'on veut obtenir au laboratoire les informations normalement attendues d'un pilote, il faut établir des relations entre les propriétés des lits de laboratoire et des lits industriels. Ces relations sont établies avec des poudres et des gaz inertes. Il apparaît que, dans ces conditions, les propriétés physiques d'un lit, y compris celles relatives aux transferts, ne dépendent, que de la vitesse minimum de fluidisation de la poudre.

Des relations établies dans la première partie, il est déduit qu'une extrapolation avec des données de laboratoire est possible même si le système réactionnel est complexe. Une stratégie pour définir les expériences nécessaires est alors proposée. En termes d'utilité immédiate, ces résultats suggèrent une méthode expérimentale simple pour améliorer les catalyseurs des unités industrielles.

## 1 ACQUISITION DES RELATIONS

### 1.1 Choix d'un énoncé du problème

#### 1.1.1 Problèmes à résoudre

Le cheminement suivi lors de l'extrapolation avec un pilote est schématiquement le suivant :

De très bons résultats ayant été obtenu avec un lit de laboratoire en ce qui concerne la chimie et le taux de transformation du réactif principal (> 99,5 %), une industrialisation est envisagée. Le diamètre du lit est augmenté. À chaque étape on essaie de retrouver les résultats obtenus en laboratoire. On agit sur les conditions de marche (hauteur du lit, vitesse des gaz, etc.) et sur le catalyseur (activité, granulométrie, etc.). Lorsque l'on ne note plus d'effet du diamètre du lit, on extrapole à hauteur de lit et conditions opératoires constantes. Ceci est obtenu avec des pilotes de 0,25 à 0,50 m de diamètre et des couches fluidisées de l'ordre de 10 m de haut.

Dans ce cheminement, l'un des problèmes majeurs rencontrés concerne le contact gaz/catalyseur. Il est très sensible à la

dimension des bulles. Au laboratoire, il est satisfaisant, même excellent. Le diamètre des bulles est imposé par celui des appareils. De très hauts taux de transformation sont faciles à obtenir : il suffit de donner au catalyseur l'activité nécessaire. Celui-ci est en général constitué de particules de 100 à 150  $\mu\text{m}$  pour limiter les entraînements et faciliter sa préparation. Mais si on met ce catalyseur dans un appareil de 0,5 m de diamètre, il est impossible, quelle que soit son activité et la hauteur du lit, d'obtenir de hauts taux de transformation (> 99 %) ; on plafonne vers 70-80 %. Le diamètre des bulles peut, avec certains catalyseurs, atteindre celui de l'appareil (0,5 m).

Le vrai problème est d'élaborer un catalyseur apte à générer de lui-même des petites bulles pour réaliser un bon contact gaz/catalyseur. Ceci se fait en jouant sur les propriétés physiques du catalyseur (granulométrie, densité apparente des particules, forces d'adhésion entre les particules). D'où toute une série d'essais où sont mêlés contacts gaz/solide et chimie. Essais longs et coûteux, car ils exigent de grandes quantités de catalyseur et de réactif, et ce, sans être certain qu'un résultat final satisfaisant sera atteint. Des pièges sont à éviter pour éviter les échecs toujours possibles.

Supposons que tous ces faits soient bien connus, tels qu'ils ont été présentés dans la première partie de l'article. Supposons aussi que les techniques de calcul et de construction des appareils (distributeurs, cyclones, etc.) soient bien maîtrisées. Vouloir éviter l'étape pilote conduit à se poser au moins deux questions au sujet de tout catalyseur qui donnerait toute satisfaction au laboratoire :

Permettra-t-il d'accéder à un haut taux de conversion (> 99 %) dans l'unité industrielle ?

En supposant que ceci soit acquis, que deviendra la chimie si le système de réactions est complexe ? Un réacteur à lit fluidisé convient-il ?

Répondre à ces deux questions implique de savoir simuler en laboratoire un réacteur industriel pour en connaître les performances chimiques, en assurant au catalyseur le même environnement physico-chimique que dans le réacteur industriel. Il est en outre nécessaire de trouver au moins une propriété physique qui, mesurée sur l'appareil de laboratoire opérant en simulation chimique, permettrait d'apprécier les performances du catalyseur en contact gaz/solide dans un réacteur industriel.

Deux réacteurs donnent le même résultat chimique si les évolutions subies par les réactifs y sont les mêmes. Le modèle phénoménologique de May (1959), exposé en détail dans le premier article et résumé en annexe, représente bien les faits expérimentaux. De ce fait, on admettra que les évolutions subies par les réactifs dans deux réacteurs distincts sont identiques si elles le sont selon le modèle de May. Ceci signifie que les deux réacteurs ont le même nombre d'unités de transfert, de dispersion axiale et de réaction, et offrent le même temps de séjour total. Ceci implique de disposer de corrélations pour exprimer toutes ces grandeurs. La tentative faite pour obtenir ces corrélations avec des produits inertes a réussi ; les méthodes utilisées et les résultats obtenus sont exposés ci-dessous.

### 1.1.2 Méthodologie adoptée et résultats

Il est d'abord nécessaire de savoir caractériser une poudre par très peu de paramètres. Dans cette optique, il a été choisi d'examiner si la vitesse minimum de fluidisation  $U_{mf}$  pouvait convenir pour caractériser une poudre. Ceci a été fait en essayant de corrélérer en fonction de  $U_{mf}$  chacune des propriétés des lits fluidisés, y compris les deux paramètres du modèle de May caractérisant le transfert et la dispersion axiale.

Les particules fines sont les seules à présenter un intérêt pour les lits fluidisés catalytiques à haut taux de conversion. Les forces de cohésion entre les particules sont alors non négligeables. Elles sont très sensibles à l'environnement physico-chimique et à la présence ou non de particules ultra-fines. Les valeurs de  $U_{mf}$  en dépendent. Pour essayer d'en tenir compte, on a procédé comme suit :

- toutes les tentatives de corrélation ont été faites avec des gaz et des poudres inertes ;
- les valeurs de  $U_{mf}$  prises en considération ont été déterminées dans un appareil standardisé sur des échantillons prélevés dans les appareils d'essais ;
- les effets des charges électrostatiques ont été minimisés et stabilisés par humidification du gaz de fluidisation ;
- les appareils d'essais ont été munis de cyclones et/ou de manches filtrantes pour arrêter et recycler les particules fines. Leurs distributeurs ont été conçus pour minimiser l'attrition et éviter tout retour de poudre à l'arrêt ;
- avant toute série d'essais, les poudres ont été fluidisées pour en stabiliser les propriétés, et la reproductibilité et la cohérence des résultats ont été examinées après les essais.

Une vingtaine de poudres ont été utilisées avec quelques gaz inertes dans des maquettes en PVC de 0,02, 0,07, 0,25 et 0,5 m de diamètre. Toutes les propriétés examinées se sont, ainsi qu'on le verra plus loin, parfaitement corrélées en fonction de  $U_{mf}$ . Le modèle à deux paramètres de May est devenu un modèle à un paramètre : le modèle à  $U_{mf}$ .

## 1.2 Poudres utilisées et mesure de $U_{mf}$

### 1.2.1 Poudres utilisées

Quatre matériaux ont été utilisés : alumine (A), silice-magnésie (M), sable (S), et farine de ciment (C). Les granulométries étaient peu dispersées (Coupes) et très dispersées (Mélanges). Des exemples sont donnés sur un graphique de type Rosin-Ramler (*fig. 1*). Le diamètre moyen en poids des particules a varié de 8 à 250  $\mu\text{m}$ , leur densité de 1,3 à 2,84 (celle des matériaux de 2,5 à 2,84), et leur facteur de forme de 0,5 à 0,9. Cette dernière grandeur a été déduite des pertes de charge de chaque poudre en lit fixe, en utilisant les propriétés de la relation de Kozeny-Carman.

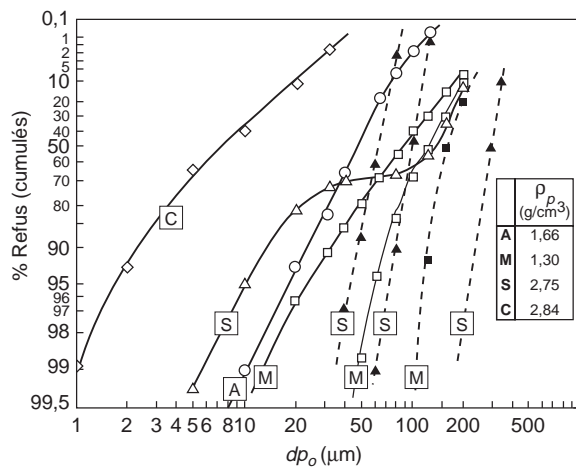


Figure 1

Quelques exemples de granulométrie des poudres utilisées. A, M, S et C correspondent à des matériaux différents.

Examples of powder granulometries used. A, M, B and C are four different materials.

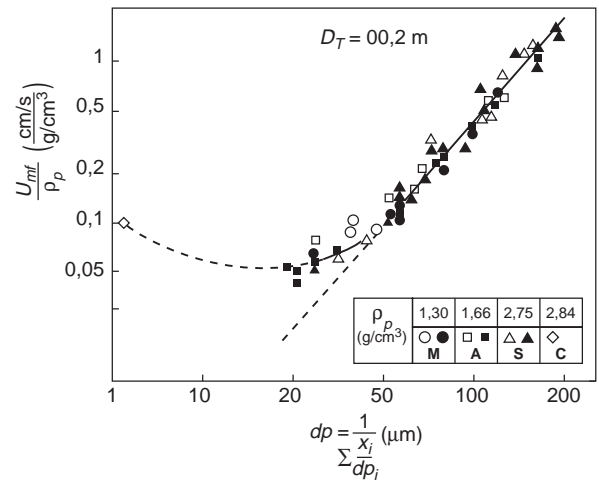


Figure 2

Vitesses minimales de fluidisation  $U_{mf}$  en fonction du diamètre moyen des particules, mesurées dans un appareil de 0,02 m de diamètre.

Variations of incipient fluidization velocity against mean particle diameter in a 0.02-m-diameter tube.

### 1.2.2 Mesures de $U_{mf}$

L'appareil est un tube de 0,02 m de diamètre et d'environ 1 m de hauteur. La hauteur préconisée de poudre au repos est de 0,3 à 0,5 m. Le faible diamètre du lit et sa hauteur relativement élevée permettent d'atténuer le phénomène de passages préférentiels avec les poudres fines en frappant le tube avec un objet métallique. Le distributeur est réalisé avec trois capillaires de 1 mm de diamètre et de 30 mm de long portés par un bouchon. Ils sont recouverts du côté du lit d'un tissu. La sortie des gaz est coiffée avec un filtre en carton. Des petits chocs sur ce filtre permettent de recycler les particules entraînées.

La poudre est fluidisée à une vitesse qui donne un état bouillonnant sans entraînement notable de particules, puis est ramenée à l'état de lit au repos. Ensuite, les mesures sont faites à vitesse de gaz croissante, puis décroissante, par paliers, en attendant à chacun d'eux que les observations soient stables.  $U_{mf}$  est déduite des courbes de perte de charge.

La figure 2 montre comment  $U_{mf}/\rho_p$  est lié au diamètre moyen  $dp$  des particules défini par la relation  $1/dp = \sum x_i / dp_i$ . Dans cette relation,  $x_i$  représente la fraction pondérale de poudre retenue entre deux tamis fictifs d'ouverture moyenne  $dp_i$ . Le calcul est effectué à l'aide de la courbe de granulométrie divisée graphiquement en fractions pondérales  $x_i$ .

Cette figure montre un très net effet des forces d'adhésion entre les particules pour  $dp < 50 \mu m$ . Elle permet de proposer pour  $dp > 50 \mu m$  la relation :

$$U_{mf}/\rho_p = 0,5 (\mu_{air}/\mu_g)(dp/100)^2 \quad (1)$$

La constante 0,5 est en accord avec celles de Massimila (0,4 à 0,5) et de Rowe, Davidson, Richardson et Geldart (0,6 à 0,7).

Les nombreuses observations faites pendant la mise en fluidisation et la désaération sont présentées ci-dessous en utilisant l'une des expériences faites dans un appareil de 0,25 m de diamètre avec des particules fines.

### 1.3 Propriétés hydrodynamiques des lits

#### 1.3.1 Mise en fluidisation - Grandeurs caractéristiques

Les figures 3 et 4 présentent une courbe d'expansion établie dans un appareil de 0,25 m de diamètre avec une poudre fine (matériau M,  $\rho_p = 1,3 \text{ g/cm}^3$ ,  $U_{mf} = 0,1 \text{ cm/sec}$ , soit pour  $dp$  une valeur moyenne de  $40 \mu m$  d'après la figure 2).

Sur cette courbe, suivie par paliers à vitesse de gaz descendante, la hauteur  $h$  du lit :

- décroît linéairement avec  $U$  pour  $U > 5 \text{ cm/sec}$  ;
- passe par un minimum pour  $U = V_c = 2,5 \text{ cm/sec}$  à  $h = h_c = 1,75 \text{ m}$  ;
- se stabilise à  $h = h_b = 1,85 \text{ m}$  pour  $0,8 > U > 0,3 \text{ cm/sec}$  ;
- puis décroît à nouveau linéairement avec  $U$  entre  $U = V_b = 0,3 \text{ cm/sec}$  et  $U = U_{mf} = 0,1 \text{ cm/sec}$ , de  $h_b = 1,85 \text{ m}$  à  $h_{mf} = 1,57 \text{ m}$ .

À chaque palier,  $h$  fluctue autour d'une valeur moyenne avec une amplitude d'autant plus grande que  $U$  est élevée. Les périodes de fluctuations sont de quelques secondes pour  $U > 0,8 \text{ cm/sec}$  et de plusieurs minutes entre 0,3 et 0,8 cm/sec.

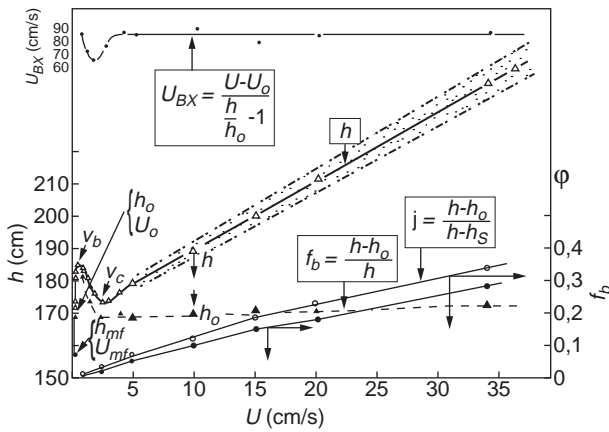


Figure 3

Courbe d'expansion pour une poudre de  $U_{mf} = 0,1\text{cm/s}$  obtenue avec un appareil de  $D_T = 0,25\text{ m}$  pour des vitesses de gaz  $U$  de 0 à 0,35 m/s.

Expansion curve obtained in  $D_T = 0,25\text{ m}$  with a powder of  $U_{mf} = 0.1\text{ cm/s}$  and superficial gas velocities of 0-0.35 m/s.

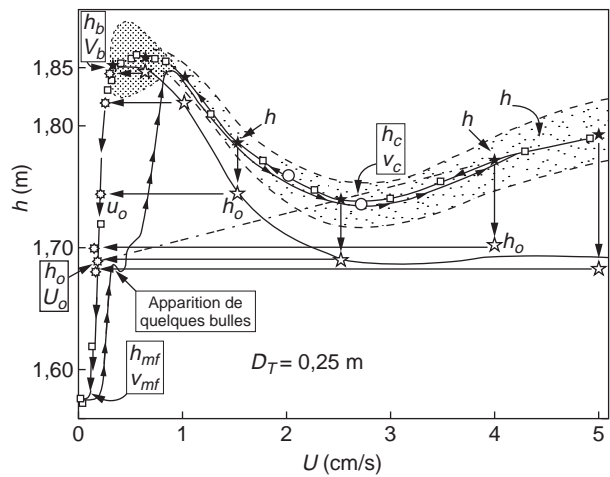


Figure 4

Agrandissement de la figure 3 pour le domaine  $0 < U < 0,05\text{ m/s}$ .

Enlarging of a part of Figure 3 ( $0 < U < 0.05\text{ m/s}$ ).

Parallèlement, les bulles (dont la taille a toujours été très inférieure à  $D_T = 0,25\text{ m}$ ) diminuent en nombre avec  $U$ , deviennent petites pour  $U < V_c$ , rares (de l'ordre de 10 par minute) pour  $U = V_b$ , puis disparaissent (1 à 2 par minute) à une vitesse comprise entre  $V_b$  et  $U_{mf}$ .

Si l'on coupe l'alimentation en gaz, la hauteur du lit s'abaisse rapidement de  $h$  à  $h_o$  (il perd ses bulles), puis lentement de  $h_o$  à  $h_{mf}$  avec une vitesse initiale  $U_o$ .  $h_o$  représente le volume de phase dense et  $U_o$  la vitesse superficielle du gaz qui la traverse lorsque le lit est fluidisé à la vitesse  $U$ . Les valeurs de  $h_o$  ont été portées aux abscisses  $U$  et celles de  $U_o$  aux ordonnées  $h_o$  sur les figures 3 et 4.

Pour  $U > 5\text{ cm/sec}$  les valeurs de  $h_o$  et  $U_o$  sont pratiquement constantes. Elles peuvent être assimilées aux coordonnées de l'intersection de la droite d'expansion à  $U > 5\text{ cm/s}$  avec celle définie par les points  $(h_{mf} - U_{mf})$  et  $(h_b - V_b)$ . Ceci permet d'écrire une loi d'expansion du lit :

$$(h - h_o)/(U - U_o) = h_o/U_{BX} \quad (2)$$

Dans cette relation,  $h_o$  et  $U_o$  et  $U_{BX}$  sont constantes. Cette équation peut aussi s'écrire :

$$\begin{aligned} \theta_B &= (h - h_o)/(U - U_o) \\ &= h_o/U_{BX} \\ &= h_o/(U - U_o + U_{BX}) \\ &= h/U_A \end{aligned} \quad (3)$$

où  $\theta_B$  est le temps de séjour des bulles dans le lit ;  
 $U_A$  est la vitesse vraie des bulles ;  
 $U_{BX}$  est la vitesse des bulles par rapport à la phase dense.

Pour  $U < 5\text{ cm/sec}$  les valeurs de  $h_o$  se rapprochent de celles de  $h$ , et celles de  $U_o$  de  $V_b$ .

À  $U = V_b$ , on a  $h_o = h = h_b$  et  $U_o = V_b$ .

Les mesures de  $h$ ,  $h_o$ ,  $h_{mf}$  et  $U_o$  permettent de calculer :

– la vitesse des bulles par rapport à la phase dense :

$$U_{BX} = (U - U_o)/(h/h_o - 1) ;$$

– la fraction volumique du lit occupée par les bulles :

$$f_b = (h - h_o)/h ;$$

– la fraction volumique du gaz du lit sous forme de bulles  $\phi = (h - h_o)/(h - h_s)$  où  $h_s$  est égal à la hauteur qu'occuperait le solide en l'absence de toute porosité.

Les résultats sont présentés sur les figures 3 et 4.  $f_b$  et  $\phi$  apparaissent comme des fonctions de  $U$  qui ignorent les variations fantaisistes de  $h$ ,  $h_o$  et de  $U_o$  pour  $U < V_c$ .

À vitesse de gaz croissante, la courbe d'expansion est plus délicate à établir pour  $U < 0,8\text{ cm/sec}$ , ainsi que l'illustre la figure 4.

Lorsque l'on évolue vers des poudres à particules grossières,  $V_b$ ,  $U_o$  et  $U_{mf}$  se rapprochent puis se confondent. Il en est de même pour  $h_b$ ,  $h_o$  et  $h_{mf}$ . Seul un effet qui rappelle celui de  $V_c$  subsiste. La relation linéaire (2) obtenue avec des particules fines reste valable en posant  $U_o = U_{mf}$  et  $h_o = h_{mf}$ .

En évoluant vers les particules très fines ( $U_{mf} < 0,1\text{cm/s}$ ), on a noté dans  $D_T = 0,02\text{ m}$  les faits suivants : le point  $(h_o, U_o)$ , intersection de la prolongation de la droite d'expansion à  $U > 5\text{ cm/s}$  avec la droite qui relie les points  $(h_{mf}, U_{mf})$  et  $(h_b, V_b)$ , se déplace sur cette droite vers le point  $(h_b, V_b)$  puis au-delà. Ainsi  $U_o$  devient supérieur à  $V_b$ . De plus,  $U_o$  et  $V_b$ , qui diminuaient lorsque  $U_{mf}$  diminuait, se mettent à augmenter lorsque  $U_{mf}$  diminue. La vitesse de désaération continue à

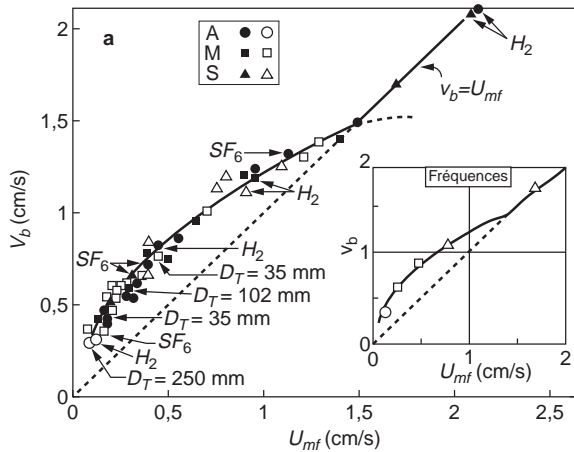


Figure 5a

Vitesse superficielle du gaz à l'apparition (ou disparition) des bulles en fonction de la vitesse minimale de fluidisation. Les déterminations sont faites, sauf indication contraire, avec de l'air et un appareil de 0,02 m de diamètre.

Variations of superficial gas velocity when bubbles appear (or disappear) against incipient fluidization velocity. Measures are made (except other indication) with air into a 0,02-m-diameter tube.

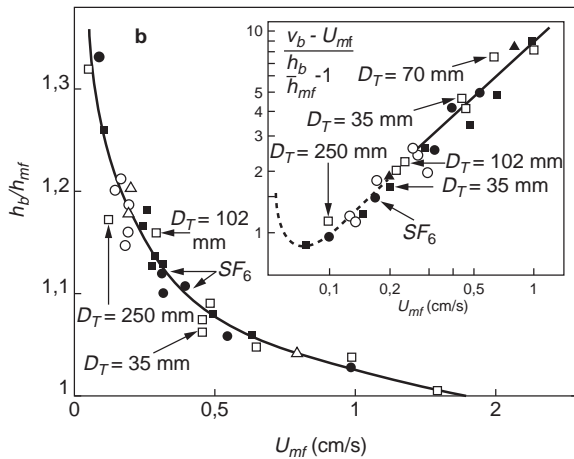


Figure 5b

Expansion du lit à l'apparition (ou disparition) des bulles. Bed expansion when bubbles appear (or disappear).

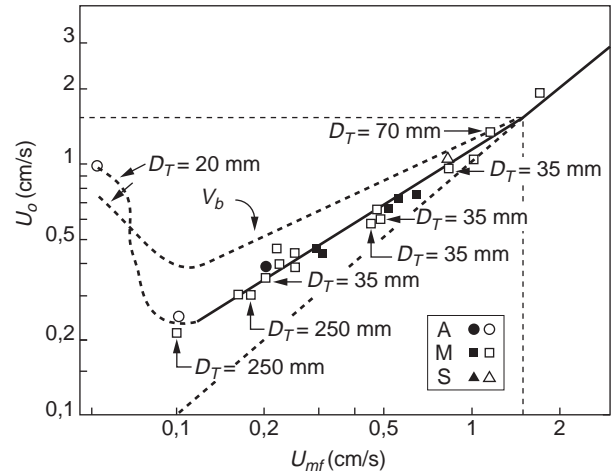


Figure 6

Vitesse superficielle des gaz à travers la phase dense en fonction de la vitesse minimale de fluidisation. Comparaison à la vitesse d'apparition (ou disparition) des bulles.

Variations of the superficial gas velocity through dense phase against incipient fluidization gas velocity. Comparison with bubbles appearance (or disappearance) superficial gas velocity.

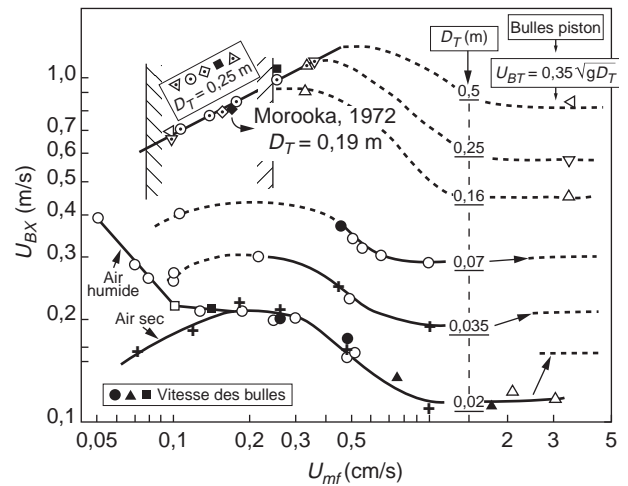


Figure 7

Coefficients d'expansion  $U_{BX}$  en fonction de  $U_{mf}$  déduits des courbes d'expansion (points blancs) et de la mesure de la vitesse des bulles (points noirs) dans des lits à bulles libres ( $D_T \geq 0,25$  m et  $U - U_o > 0,1$  m/s) et des lits pistonnants de laboratoire ( $h/D_T > 15$  et  $U - U_o > 0,08 (gD_T)^{0,5}$ ).

Variations of the expansion coefficient  $U_{BX}$  against incipient fluidization velocity  $U_{mf}$  deduced from expansion curves (white points) and from bubbles velocity (black points) into free bubbling beds ( $D_T \geq 0,25$  m;  $U - U_o > 0,1$  m/s) and into slugging laboratory beds ( $h/D_T > 15$  and  $U - U_o > 0,08 (gD_T)^{0,5}$ ).

diminuer (elle n'est plus voisine de  $U_o$ ). Pour  $U_{mf} = 0,05$  cm/s et  $h_{mf} = 0,54$  m, on a noté :  $V_b = 0,8$  cm/s avec  $h_b = 0,72$  m,  $U_o = 1$  cm/s avec  $h_o = 0,81$  m et une vitesse de désaération d'environ 0,15 cm/s. C'est probablement le début de l'évolution vers les lits moussants de De Vries *et al.* (1972) et les poudres à désaération difficile. Ces observations, très sommaires, ont été faites avec des poudres de  $U_{mf} = 0,05, 0,08$  et 0,12 cm/s et de diamètre moyen des particules de 21, 27 et 38  $\mu$ m. Elles sont notées en pointillé sur les figures 5b, 6 et plus précisément sur la figure 7.

On verra ci-dessous que les valeurs de  $U_{mf}$ ,  $V_b$ ,  $h_o$  et  $h_o/h_{mf}$  sont indépendantes du diamètre de l'appareil, que celles de  $h/h_{mf}$  et  $U_{BX}$  en sont très dépendantes dans les lits de laboratoire, et que celles de  $V_c$  en sont peu dépendantes. Ceci semble lié au phénomène « bulles » qui n'apparaît intensément qu'avec  $U > V_c$ .

### 1.3.2 Relations entre $V_b$ , $h_b$ , $U_o$ , $h_o$ , $V_c$ , $h_c$ et $U_{mf}$

Les résultats expérimentaux relatifs à  $V_b$ ,  $h_b$ ,  $U_o$  et  $h_o$  sont illustrés par les figures 5a et 5b. Ils ont été établis dans des appareils de  $D_T = 0,02, 0,035, 0,10$  et  $0,25$  m, avec des poudres de granulométries peu dispersées (points noirs), très dispersées (points blancs), plusieurs gaz (air, hydrogène, hexafluorure de soufre) et divers matériaux (A, M, S, C). Les valeurs de  $U_{mf}$  ont varié de  $0,1$  à  $2$  cm/s et celles de  $\rho_p$  de  $1,3$  à  $2,84$  g/cm<sup>3</sup>. Ils ont permis d'établir les relations suivantes pour  $U_{mf} < 1,5$  cm/s :

$$V_b = 0,52 (U_{mf}/0,2) \quad (4)$$

$$h_b/h_{mf} = 1 + (V_b - U_{mf})/9U_{mf} \quad (5)$$

$$U_o = 0,35 (U_{mf}/0,2) \quad (6)$$

$$h_o/h_{mf} = 1 + (U - U_o)/9U_{mf} \quad (7)$$

Ces relations deviennent pour  $U_{mf} > 1,5$  cm/s :

$$V_b = U_o = U_{mf} \quad (8)$$

$$h_b = h_o = h_{mf} \quad (9)$$

La corrélation relative à  $h_o$  a été déduite de celle de  $h_b$  en considérant que le point  $(h_o, U_o)$  est situé sur la droite  $(h_{mf}, U_{mf}) - (h_b, V_b)$ . On notera que  $V_b$ ,  $U_o$ ,  $h_b/h_{mf}$  et  $h_o/h_{mf}$  sont des fonctions de  $U_{mf}$  indépendantes du diamètre de l'appareil et de la nature des gaz. La figure 5a montre la cohérence entre ces mesures et celles effectuées avec des sondes pour l'étude du phénomène bulles présentée plus loin.

Les résultats relatifs à  $V_c$  et  $h_c$  sont plus complexes. Lorsque  $U_{mf}$  varie de  $0,10$  à  $0,8$  cm/s :

–  $(V_c - U_{mf})$  varie de  $1,3$  à  $1,1$  cm/s avec  $D_T = 0,02$  m et de  $1,6$  à  $1,4$  cm/s avec  $D_T = 0,035, 0,10$  ou  $0,25$  m.

–  $h_c/h_{mf}$  reste proche de  $1,07$  avec  $D_T = 0,25$  m et diminue de  $1,25$  à  $1,06$  avec  $D_T = 0,02$  m.

Au-dessous de  $U_{mf} = 0,1$  cm/s,  $(V_c - U_{mf})$  et  $h_c/h_{mf}$  ont tendance à augmenter très rapidement. Pour  $U_{mf} = 0,05$  cm/s,  $(V_c - U_{mf})$  atteint  $1,7$  cm/s avec  $D_T = 0,02$  m, et  $2,6$  cm/s avec  $D_T = 0,035$  m. Simultanément  $V_b$  cesse de diminuer pour augmenter (de  $0,45$  à  $0,8$  cm/s avec  $D_T = 0,02$  m). On évolue probablement vers les lits moussants signalés par de Vries *et al.* (1972).

### 1.3.3 Relations entre $U_{BX}$ et $U_{mf}$

$U_{BX}$  a été calculé selon la relation (2).

Des valeurs indépendantes de  $h_o$  et de  $(U - U_o)$  (fig. 8) ont été obtenues dans les conditions suivantes :

– avec  $D_T = 0,02, 0,035$  et  $0,07$  m, pour  $(U - U_o) > 0,08(gD_T)^{0,5}$ ,  $h_{mf}/D_T > 15D_T$  et  $0,1 < U_{mf} < 4$  cm/s ;

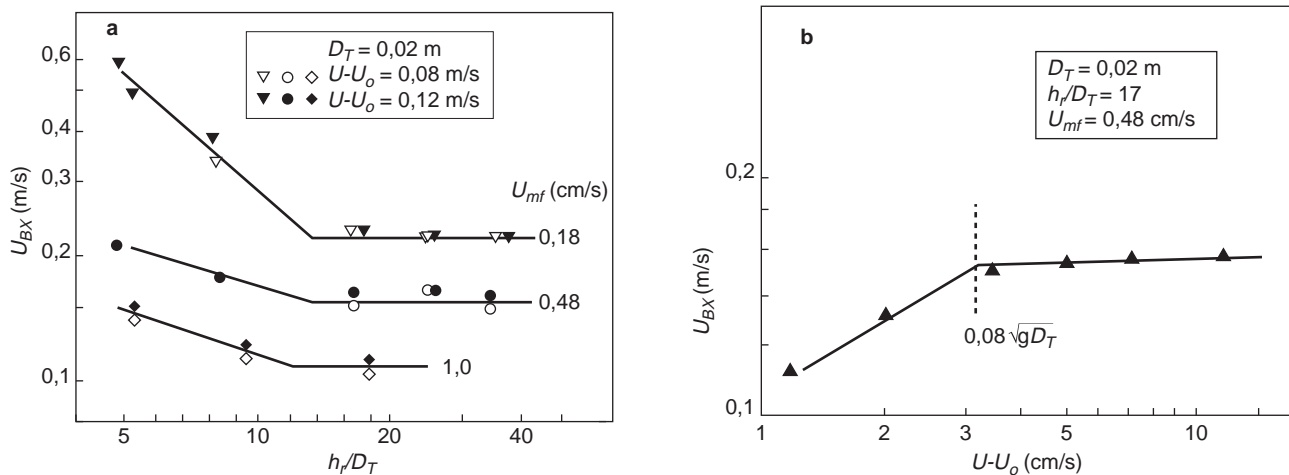


Figure 8

Coefficient d'expansion  $U_{BX}$  d'un lit de laboratoire (de  $D_T = 0,02$  m) en fonction de sa hauteur au repos ( $h_r/D_T$ ), de la vitesse superficielle du gaz ( $U - U_o$ ) et de la poudre ( $0,18 < U_{mf} < 1$  cm/s).

Variation of the expansion coefficient of a laboratory bed ( $D_T = 0,02$  m) against settled bed height ( $h_r/D_T$ ), superficial gas velocity ( $U - U_o$ ) and the fluidized powder ( $0,18 < U_{mf} < 1$  cm/s).



- avec  $D_T = 0,25$  et  $0,5$  m,  $(U - U_o) > 0,1$  m/s (testé jusqu'à  $0,4$  m/s) et  $U_{mf} < 0,4$  cm/s.

De la figure 7 sur laquelle ces valeurs ont été portées, on déduit :

- pour  $U_{mf} > 1,5$  cm/s et  $0,035 < D_T < 0,5$  m, on obtient :

$$U_{BX} = 0,35 (gD_T)^{0,5} \quad (10)$$

On retrouve la relation proposée par Matsen pour les lits pistonnants :

- pour  $U_{mf} < 0,3$  cm/s et  $D_T > 0,2$  m, on obtient :

$$U_{BX} = 0,88 (U_{mf}/0,2) \quad (11)$$

Le diamètre  $D_T$  du lit n'intervient plus. Le lit est à bulles libres ;

- pour les autres domaines, il faut consulter la figure 7. On y notera que dans les lits de laboratoire,  $U_{BX}$  augmente d'un facteur 1,5 lorsque  $U_{mf}$  s'abaisse de 1,5 à 0,3 cm/s.

### 1.3.4 Relations entre $f_b$ , $\phi$ et $U_{mf}$

- $f_b = (h - h_o)/h$  : en lui associant  $(h - h_o)/(U - U_o) = h_o/U_{BX}$ , on obtient :

$$f_b = (U - U_o)/(U - U_o + U_{BX}) \quad (12)$$

La connaissance de  $U_{BX}$  entraîne celle de  $f_b$  :

- $\phi = (h - h_o)/(h - h_s)$  : des valeurs ont été portées sur la figure 9 pour  $D_T = 0,02$  et  $0,25$  m. Elles augmentent lorsque  $D_T$  diminue. Elles sont proportionnelles à  $(U - U_o)$ , augmentent avec  $U_{mf}$  pour  $D_T = 0,02$  m, mais en sont indépendantes pour  $D_T = 0,25$  m. La figure 9 permet d'écrire, si  $D_T = 0,25$  m :

$$\phi = 0,25 (U - U_o)/0,20 \quad (13)$$

### 1.3.5 Relation entre la perte de charge et $U_{mf}$

Dans un appareil de 0,02 m de diamètre, la friction de la poudre sur les parois peut engendrer une chute de la pression totale du gaz  $\Delta P$  supérieure au poids du lit  $\Delta P_{th}$ . L'excès mesuré évolue comme  $h_{mf}$  puis se stabilise pour  $h_{mf} > 0,5$  m. Ces valeurs stables ont été portées sur la figure 10 en fonction de  $(U - U_o)$  et de  $U_{mf}$  et sont proportionnelles à  $(U - U_o)$  et  $U_{mf}$ . Elles ne sont mesurables que pour  $U_{mf} > 0,25$  cm/s. C'est un phénomène spécifique aux petits appareils, qui n'est pas perceptible avec  $D_T = 0,035$  m. De la figure 10 on déduit pour  $U_{mf} < 3$  cm/s :

$$\Delta P/\Delta P_{th} - 0,87 = 0,44 [(U - U_o)/0,05] [U_{mf}/1,5] \quad (14)$$

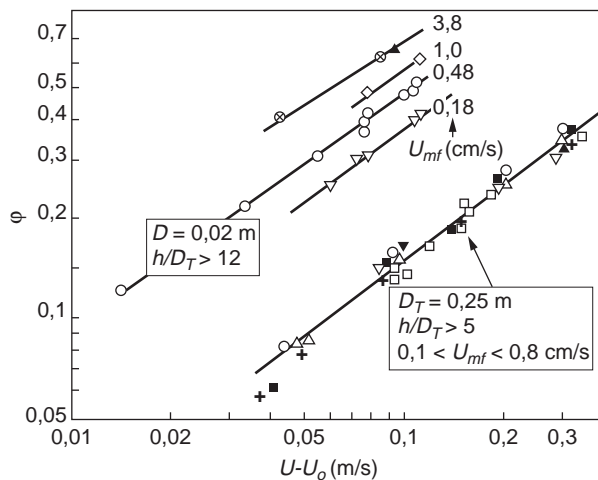


Figure 9

Fraction volumique du gaz présent sous forme de bulles dans des lits de 0,25 et 0,02 m de diamètre en fonction de la vitesse superficielle des gaz et de la vitesse minimum de fluidisation.

Variations of volumetric fraction of gas occupied by bubbles into 0.02 m and 0.25 m diameter beds against superficial gas velocity and incipient fluidization velocities of powders fluidized.

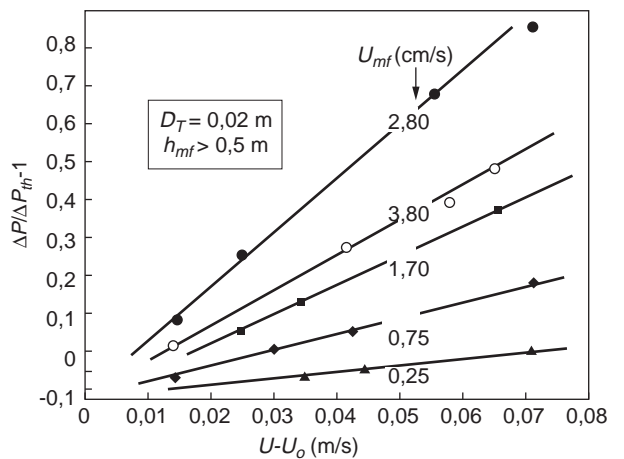


Figure 10

Excès de perte de charge observée avec un appareil de  $D_T = 0,02$  m pour un lit de hauteur au repos  $> 0,5$  m en fonction du débit de gaz pour différentes poudres.

Variations of gas pressure drop excess against superficial gas velocity and incipient fluidization velocity of powders into a 0.02 m diameter bed with heights of settled beds upper than 0.5 m.

**1.3.6 Relation entre les fluctuations de pression et  $U_{mf}$**

La fluctuation de pression a été quantifiée avec le rapport  $\Delta P_F/P_T$ , où  $\Delta P_F$  est l'écart type de la pression moyenne  $P_T$  au bas du lit.  $\Delta P_F$  et  $P_T$  sont déduites des indications données par un capteur piézorésistif rapide placé en amont du distributeur (les corrections ont été < 15 %). Les mesures ont été effectuées avec des lits de 0,02 et de 0,1 m de diamètre pour :

- $0,5 < h_{mf}/D_T < 50$  ;
- $0,1 < U_{mf} < 1,7$  cm/s ;
- $0,01 < (U - U_o) < 0,12$  m/s.

On a constaté que  $\Delta P_F/P_T$  passe par un maximum pour  $h_{mf}/D_T = 4$ , croît comme  $(U - U_o)$  pour  $(U - U_o) < 0,08(gD_T)^{0,5}$  (soit < 0,035 m/s avec  $D_T = 0,02$  m et < 0,079 m/s avec  $D_T = 0,1$  m), et comme  $(U - U_o)^{0,5}$  pour  $U - U_o > 0,08(gD_T)^{0,5}$ .

La figure 11 représente  $\Delta P_F/P_T$  en fonction de  $h_{mf}/D_T$  et de  $U_{mf}$  pour  $(U - U_o) = 0,1$  m/s et  $D_T = 0,02$  m. Elle peut être utilisée dans d'autres conditions en se souvenant que  $\Delta P_F/P_T$  varie comme  $(U - U_o)^{0,5}$  si  $(U - U_o) > 0,08(gD_T)^{0,5}$  et qu'il se conserve à  $h_{mf}/D_T$  et  $(U - U_o)/0,08(gD_T)^{0,5}$  constants.

$\Delta P_F/P_T$  est mesurable pour  $0,1 < U_{mf} < 1$  cm/s. L'intérêt de placer la sonde en amont du distributeur est que les mesures restent possibles même lorsque l'on opère avec une réaction chimique.

La grandeur caractéristique  $(U - U_o) < 0,08(gD_T)^{0,5}$  a déjà été rencontrée dans l'étude de  $U_{BX}$ . Elle est à rapprocher du critère de vitesse minimum de pistonnage de Stewart (1967).

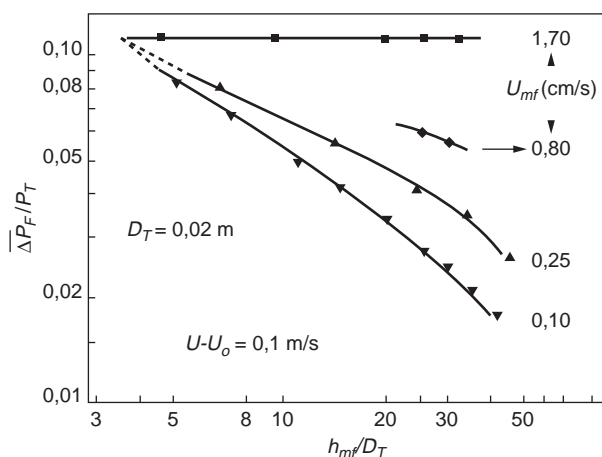


Figure 11

Fluctuation de la perte de charge observée avec un appareil de  $D_T = 0,02$  m en fonction de la hauteur du lit au repos à  $(U - U_o) = 0,1$  m/s pour différentes poudres.

Variations of pressure drop fluctuations of a 0.02 m diameter bed against height of settled bed and incipient fluidization velocity with a superficial gas velocity of 0.1 m/s.

**1.3.7 Relation entre la viscosité de la phase dense et  $U_{mf}$**

Nous avons vu que les propriétés de la phase dense ( $U_o$ ,  $h_o/h_{mf}$ ) étaient indépendantes de  $(U - U_o)$ . On peut de ce fait envisager une mesure significative de sa viscosité.

Schügerl (1971) a examiné le problème sur le plan fondamental avec un appareil de Couette (deux cylindres concentriques, dont un en rotation) qui permet d'accéder, pour un fluide, à la valeur absolue de sa viscosité (rapport entre la force de cisaillement mesurée et la contrainte de cisaillement imposée). Il a trouvé que le comportement rhéologique de la phase dense d'un lit fluidisé est bien de type newtonien, sauf aux fortes contraintes de cisaillement. Les fortes contraintes génèrent un effet dilatant (sur le lit) lorsque les particules sont très fines, et un effet densifiant (une partie du lit se défluidise) lorsque les particules sont grossières.

Il a obtenu (après adaptation) avec du sable :

- pour  $50 < dp < 100$   $\mu$ m :

$$2,7 (\mu_d/\rho_p) = 1,25 (dp/50) \tag{15}$$

- avec  $dp > 100$   $\mu$ m :

$$2,7 (\mu_d/\rho_p) = 4,7 \tag{16}$$

L'utilité du concept de viscosité pour une meilleure connaissance des lits fluidisés à particules fines a été mise en évidence dès 1948 par Matheson (1949). Il a utilisé un viscosimètre à agitateur du type Stormer et indiqué qu'il n'était pas certain de mesurer la vraie viscosité. Depuis, les corrélations établies sur l'agitation des liquides ont conduit aux corrélations suivantes :

Si  $C$  est le couple à appliquer à un agitateur de diamètre  $D$  pour obtenir une vitesse de rotation  $N$ , dans un liquide newtonien de viscosité  $\mu$  et de masse spécifique  $\rho_L$ , on a :

- $C$  proportionnel à  $N$  et  $\mu$  si  $Re < 10$  ( $Re = \rho_L \cdot N \cdot D/\mu$ ) ;
- $C$  proportionnel à  $N$  et indépendant de  $\mu$  si  $Re > 100$ .

Ainsi, un appareil à agitation permet de mesurer la viscosité vraie, si l'on respecte la condition  $Re < 10$ . Les mesures absolues de Schügerl montrent qu'elle est respectée dans les essais de Matheson.

Nous avons utilisé un appareil à agitateur de 0,02 m de diamètre. Son schéma est donné en figure 12. À vitesse de rotation  $N$  constante, le couple  $C$  diminue lorsque  $U$  augmente, puis se stabilise pour  $U > 3U_{mf}$  environ. Ces valeurs stabilisées ont été déterminées pour chaque poudre jusqu'à  $N = 350$  tr/min. Les courbes obtenues sont linéaires jusqu'à 150-200 tr/min. Dans cette partie linéaire,  $C/N$  est proportionnel à la viscosité. Un étalonnage de l'appareil a été fait avec des mélanges d'eau et de glycol de viscosités connues.

Les résultats expérimentaux sont illustrés par la figure 12 qui donne :

- pour  $U_{mf} < 1,5$  cm/s

$$\mu_d/\rho_p = 0,5 (U_{mf}/0,2) \tag{17}$$

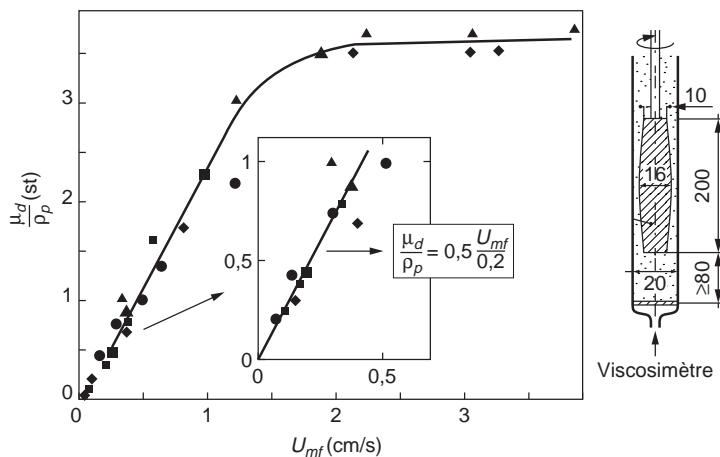


Figure 12

Viscosité de la phase dense en fonction de  $U_{mf}$  et schéma du viscosimètre.

Dense phase viscosity versus incipient fluidization velocity and viscosimeter scheme.

– pour  $U_{mf} > 1,5$  cm/s

$$\mu_d/\rho_p = 3,5 \quad (18)$$

$U_{mf}$  a varié de 0,075 à 3,8 cm/s,  $dp$  de 25 à 180  $\mu\text{m}$ ,  $\rho_p$  de 1,33 à 2,67  $\text{g/cm}^3$ , le facteur de forme de 0,5 à 0,9. Deux agitateurs de géométries différentes ont été utilisés. La majorité des poudres avait une granulométrie peu dispersée. Quelques-unes ont été obtenues en mélangeant des particules de 150  $\mu\text{m}$  avec des particules de moins de 40  $\mu\text{m}$ .

Si la corrélation est faite en fonction de  $dp$ , on obtient une discontinuité au voisinage de  $dp = 50$   $\mu\text{m}$ .

Cette discontinuité n'existe pas si la corrélation est faite en fonction de  $U_{mf}$ .

La discontinuité à  $U_{mf} = 1,5$  cm/s correspond à  $U_o = U_{mf}$  d'après l'équation (8). La phase dense n'a plus d'expansion. D'après des essais de Rowe (1976), faits sur des bulles isolées, des zones défluidisées se forment dans le sillage des bulles.

La courbe de la figure 12 a la même allure que celle que l'on peut construire avec les résultats de Schügerl. Les valeurs sont moins élevées.

Pour terminer cette étude sur la viscosité, rappelons quelques résultats de Matheson (1949) obtenus avec des particules de catalyseurs de craquage catalytique et du sable. Ils sont en parfait accord avec ceux présentés ci-dessus ou constatés par ailleurs.

La viscosité augmente avec le diamètre des particules, leur densité et leur sphéricité.

La viscosité diminue si l'on ajoute des particules fines à des particules grossières. L'effet est très marqué jusqu'à 20-30 % et d'autant plus important que les particules ajoutées sont fines. C'est, selon Matheson, la raison pour laquelle l'introduction de faibles quantités de particules fines dans un lit industriel peut en améliorer la fluidisation. Le rôle des particules fines serait d'enrober les grosses particules et de supprimer les contacts entre elles. Tout excès aurait un effet moindre.

Le concept de viscosité permet de prévoir si un lit de laboratoire est pistonnant. Si un lit, dont la hauteur de lit au repos est supérieure à 20 fois son diamètre, est soumis à un débit de

gaz croissant, l'état de bulles pistonantes apparaît à une certaine hauteur, qui s'abaisse puis se stabilise à une valeur  $L_s$ . Le graphique établi par Matheson avec du sable, du catalyseur et de la poudre de fer pour des lits de 0,019, 0,03 et 0,076 m de diamètre peut se traduire par la relation suivante où seule la viscosité intervient :  $L_s/D_T = 5 (63/\mu)$  avec  $\mu < 800$  cP.

## 1.4 Le phénomène bulles

Ce phénomène a été étudié en effectuant des mesures de fréquences et de vitesses avec des sondes capacitives dans des colonnes de 0,02, 0,035, 0,07 et 0,25 m de diamètre avec des poudres (sable, magnésie et alumine) dont les valeurs de  $U_{mf}$  étaient comprises entre 0,16 et 9,50 cm/s. Les sondes utilisées étaient constituées d'un fil métallique qui émergeait de quelques millimètres d'un tube métallique de 0,2 cm de diamètre. L'information était ponctuelle. Quelques essais ont été faits avec des sondes constituées de deux demi-colliers métalliques fixés autour de l'appareil (en verre ou PVC) à l'extérieur. L'information concernait une section du lit.

### 1.4.1 Cartographie des fréquences dans l'appareil de $D_T = 0,25$ m

Les fréquences ont été mesurées tous les 1,5 ou 3 cm sur des diamètres à des distances du distributeur de 0,5 à  $6D_T$  pour une vitesse superficielle des gaz de  $(U - U_o) = 0,1$  m/s. Trois poudres ont été utilisées. Leurs vitesses minimales de fluidisation étaient de 9,5, 0,45 et 0,25 cm/s. Les fréquences mesurées à une distance  $h_{so}$  du distributeur ont toujours été indépendantes de la hauteur du lit situé au-dessus.

Les trois poudres étudiées ont donné chacune une cartographie. Elles sont représentées sur les figures 13a, 13b et 13c. Nous les avons appelées :

- cartographie des lits à bulles évolutives, gênées et pistonantes ( $U_{mf} = 9,5$  cm/s) ;
- cartographie de transition entre lit à bulles gênées et lit à bulles libres ( $U_{mf} = 0,45$  cm/s) ;

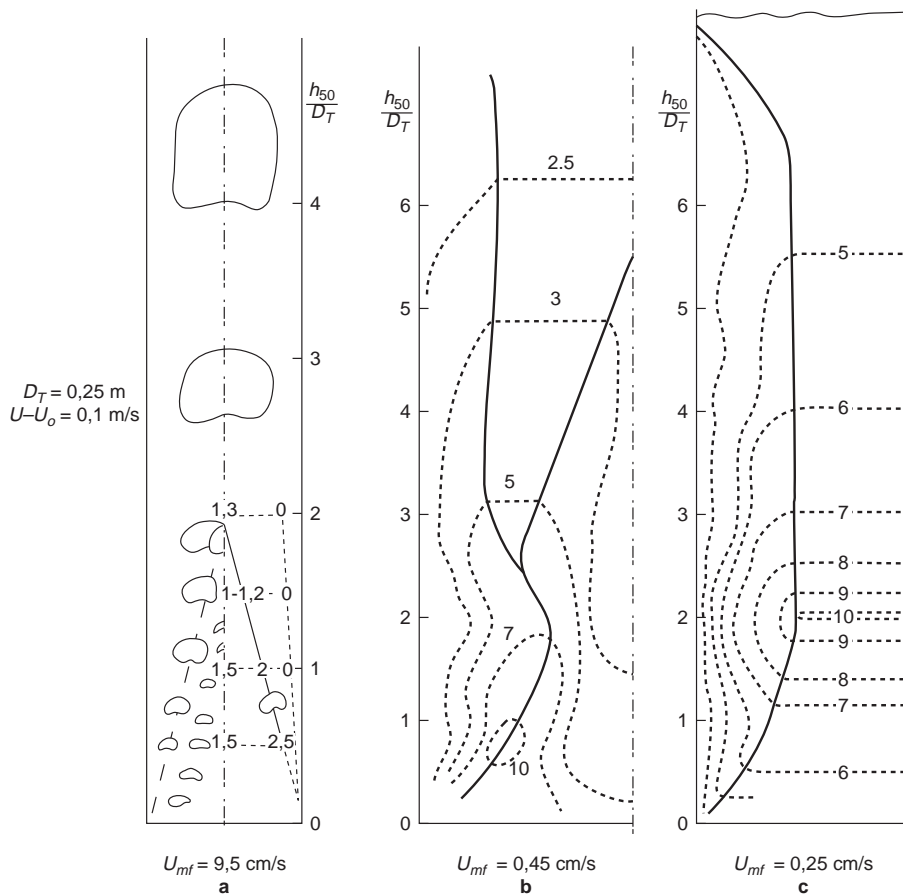


Figure 13

Cartographie de la fréquence (en 1/s) des bulles dans des lits de  $D_T = 0,25$  m fluidisés à  $(U - U_o) = 0,1$  m/s dont les valeurs de  $U_{mf}$  étaient de 9,5, 0,45 et 0,25 cm/s.

Bubbles frequencies (in 1/s) mapping into a 0.25-m-diameter bed at the superficial gas velocity of 0.1 m/s with incipient fluidization gas velocities  $U_{mf}$  of 9.5, 0.45 and 0.25 cm/s.

– cartographie des lits à bulles libres avec effet résiduel de *gulf stream* ( $U_{mf} = 0,25$  cm/s).

#### Cartographie des lits à bulles évolutives et pistonantes

Si l'on se déplace de la paroi à l'axe à une hauteur  $h_{so} < 2D_T$ , la fréquence passe par un maximum. Le lieu des maxima est un cône dont la base est confondue avec le périmètre du distributeur, et le sommet positionné à une hauteur de l'ordre de  $2D_T$ . Au-dessus, les bulles s'écoulent comme si elles étaient issues d'un orifice qui serait le sommet du cône. Très vite, elles coalescent et deviennent pistonantes. La figure 13a en donne une image. Quelques fréquences sont indiquées. Ces résultats sont conformes aux travaux de Werther (1974). Il a mesuré pour des particules grossières les débits locaux de bulles.

Pour  $h < 2D_T$  la cartographie obtenue en forme de tronc de cône est dite à *bulles évolutives*.

Pour  $h > 2D_T$ , elle est dite à *bulles pistonantes*.

Ces cartes sont indépendantes de  $U_{mf}$  pour  $U_{mf} > 1,5$  cm/s.

Une description des lits à bulles évolutives a été établie avec divers sables, dans des maquettes de 0,1, 0,25 et 0,5 m de diamètre. Les bulles les plus grosses qui apparaissent à la surface d'un lit à particules grossières pour  $h < 2D_T$  se répartissent sur une couronne, dont le diamètre (section du cône avec la surface du lit) diminue avec  $h$  pour s'annuler à  $h = 2D_T$ . Ce sont ces bulles qui ont été prises en compte (diamètre observé :  $D_b$ ). Les relations obtenues sont :

- conditions  $h/D_T < 1,75$  et  $(U - U_o) > 0,1$  m/s
- diamètre des bulles  $D_b/h = 1,16[(U - U_o)/(gh)^{0,5}]^{0,4}$
- expansion avec  $h/h_{mf} - 1 = (U - U_o)/U_{BX}$   
 $U_{BX} = 0,5(gD_T)^{0,5}$
- hauteur des projections  $Hp \cong 5D_b$
- fluctuations de pression  $\Delta P/P \cong 2,63(U - U_o)/(gD_T)^{0,5}$

On remarquera que dans ce domaine, où la géométrie de l'appareil ne gêne pas en principe le développement des bulles, leur diamètre  $D_b$  est bien indépendant de  $D_T$ .

### Cartographie de transition

La figure 13b donne des résultats sous forme de courbes d'isofréquence.

Pour  $h_{so} < 2D_T$ , le lieu des maxima n'est plus un cône de hauteur  $2D_T$ , mais un tronc de cône, dont le cercle situé à  $h_{so} = 2D_T$  peut être considéré comme un émetteur fictif du débit de gaz.

Pour  $2D_T < h_{so} < 4D_T$ , le tronc du cône augmente d'abord en diamètre, puis se transforme à  $h_{so} \cong 2,5D_T$  en paliers annulaires de fréquences maxima qui s'élargissent vers l'axe pour donner, à  $h_{so} \cong 5,5D_T$ , des disques qui génèrent un cylindre coaxial à l'appareil.

### Cartographie des lits à bulles libres

La figure 13c montre que les disques des paliers de fréquences maxima sont présents sur toute la hauteur du lit. Ils dessinent un cylindre évasé en bas et en haut du lit jusqu'aux parois. Le disque situé à  $h_{so} = 2D_T$  est celui où la fréquence est maximale. Il se comporte, d'après la cartographie, comme un émetteur fictif des courbes d'isofréquence.

Des mesures de fréquence faites le long de l'axe de l'appareil pour des vitesses de gaz ( $U - U_o$ ) échelonnées de 0,03 à 0,3 m/s (la figure 14 donne le cas ( $U - U_o$ ) = 0,1 m/s) ont donné des profils présentant un maximum à  $h_{so} = 2D_T$  et des valeurs stabilisées pour  $h_{so} > 6D_T$ . Les fréquences aux maxima ont évolué de 5 à 22, et celles à valeurs stabilisées de 1,5 à 12. Elles ont donc été proportionnelles à ( $U - U_o$ ).

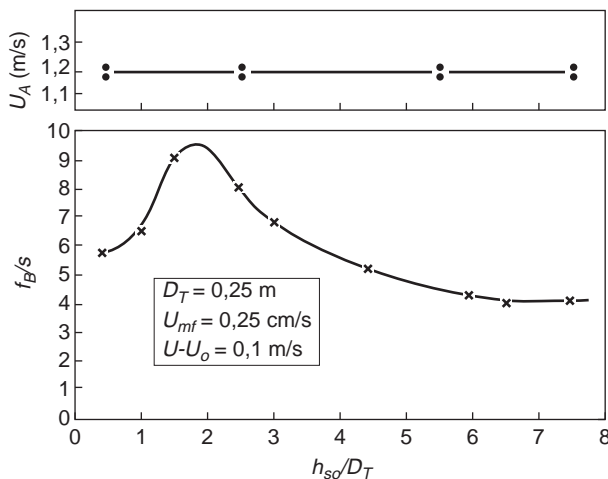


Figure 14

Comparaison des fréquences et des vitesses des bulles sur l'axe d'un lit de  $D_T = 0,25$  m en fonction de la distance au distributeur pour une cartographie très proche de celle de la figure 13c ( $U - U_o = 0,1$  m/s et  $U_{mf} = 0,25$  cm/s).

Comparisons of bubbles frequencies and bubbles velocities on the axis on a  $D_T = 0,25$  m diameter bed versus height above gas distributor for a bubbles frequencies mapping near that of Fig. 13c ( $U - U_o = 0,1$  m/s and  $U_{mf} = 0,25$  cm/s).

### Remarques complémentaires

Les figures 13a, 13b et 13c montrent qu'à ( $U - U_o$ ) constant, la fréquence augmente lorsque  $U_{mf}$  diminue de 9,5 à 0,25 cm/s. On a constaté que, si l'on diminue encore  $U_{mf}$ , la fréquence continue à augmenter et la taille des bulles à diminuer. Simultanément, l'étendue de la zone à faibles fréquences, proche des parois, diminue. L'effet *gulf stream* disparaît. Les valeurs des fréquences s'uniformisent dans tout le lit. Une corrélation entre la fréquence et  $U_{mf}$  a été établie ci-dessous pour les lits de laboratoire à bulles gênées.

Matsen (1973) a réalisé ses expériences dans un appareil de  $D_T = 0,6$  m avec des poudres de coke de pétrole dont les diamètres moyens en poids des particules variaient de 25 à 200  $\mu$ m. Ses résultats s'appuient sur des observations visuelles et des mesures de pression différentielles ; exposés en partie dans la première partie de notre article, ils sont cohérents avec nos propres observations.

### 1.4.2 Vitesses des bulles avec $D_T = 0,25$ m

La vitesse des bulles a été mesurée pour la cartographie à bulles libres de la figure 13c (avec  $U_{mf} = 0,25$  cm/s et ( $U - U_o$ ) = 0,1 m/s) sur les diamètres de l'appareil situés à des hauteurs de 0,4, 2,5, 5,5 et 7,5  $D_T$ . Elle augmente lorsque l'on s'éloigne des parois, puis reste constante sur les paliers de fréquence. Les valeurs relevées sur l'axe de l'appareil (ou sur les paliers de fréquence) ont été portées sur la figure 14 comparativement aux fréquences : elles sont constantes sur toute la hauteur du lit, donc indépendantes des fréquences, qui passent par un maximum à  $h_{so} = 2D_T$ .

La valeur de  $U_{BX}$  que l'on peut déduire de cette vitesse ( $U_A = (U - U_o) + U_{BX}$  selon l'équation (3)) est en accord avec celle issue des mesures d'expansion (fig. 7).

### 1.4.3 Fréquence dans les appareils de $D_T = 0,02$ et 0,071 m

Il s'agit d'appareils de laboratoire. Ce sont des lits à bulles gênées ou pistonantes.

La figure 15 donne pour  $D_T = 0,071$  m et  $U_{mf} = 0,48$  cm/s l'évolution de la fréquence en fonction de  $U$  et de  $h_{so}$  pour deux distributeurs (1 et 19 trous) qui offrent au gaz la même section de passage (0,85 % de celle du lit). Lorsque  $U$  augmente, la fréquence à  $h_{so}$  donnée passe par un maximum puis se stabilise pour ( $U - U_o$ ) > 0,08 ( $gD_T$ )<sup>0,5</sup> à une valeur  $f_{BP}$  fonction de  $h_{so}$ . Dans les lits à bulles libres, elle augmente en permanence avec ( $U - U_o$ ) (voir ci-dessus). L'effet du distributeur diminue lorsque l'on s'en éloigne, et disparaît pour  $h_{so} > 10D_T$ .

Ces courbes ont aussi été établies avec différentes poudres avec  $D_T = 0,02$  et 0,07 m. Les valeurs des fréquences stabilisées  $f_{BP}$  obtenues ont été portées sur la figure 16 en fonction de  $h_{so}/D_T$  et de  $U_{mf}$ . La distance au distributeur  $h_o/D_T = 10$  indique une transition entre deux régimes d'évolution et la fin de l'effet de conception du distributeur.

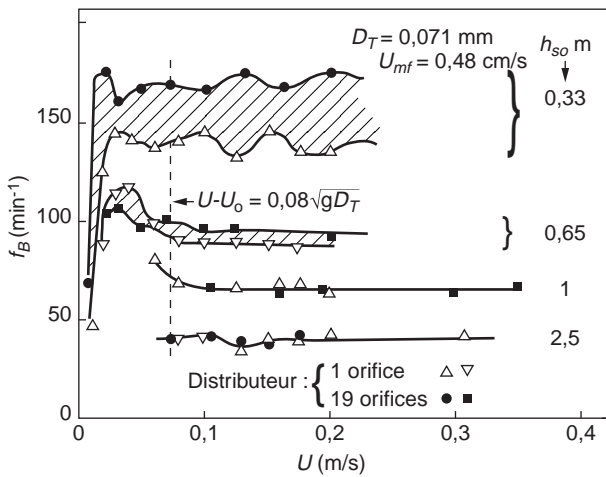


Figure 15

Fréquence des bulles observée avec  $D_T = 0,07$  m et  $U_{mf} = 0,48$  cm/s. Influence de  $(U - U_o)$ , de la distance au distributeur et de sa géométrie. Les fréquences se stabilisent pour  $(U - U_o) > 0,08 (gD_T)^{0,5}$ .

Variations of bubbles frequencies into a  $D_T = 0,07$  m diameter bed against superficial gas velocity, height above the gas distributor and design of gas distributor with a powder of incipient fluidization velocity  $U_{mf} = 0,48$  cm/s. Frequencies are constant for  $(U - U_o) > 0,08 (gD_T)^{0,5}$ .

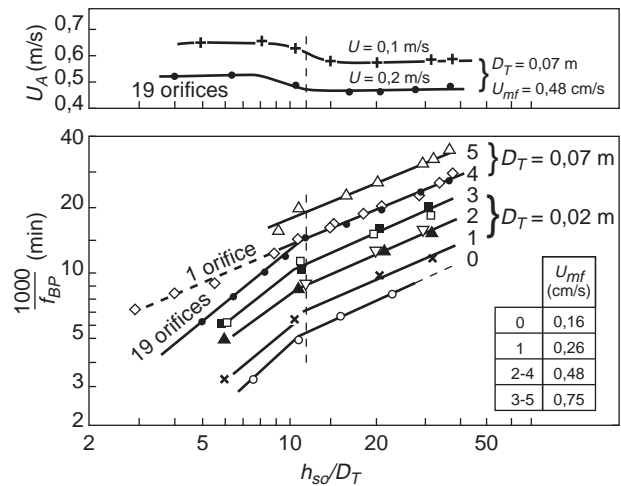


Figure 16

Évolution des fréquences stabilisées obtenues pour  $(U - U_o) > 0,08 (gD_T)^{0,5}$  avec des lits de 0,02 et 0,07 m de diamètre, en fonction de la distance au distributeur pour différentes poudres. En parallèle, examen à  $(U - U_o) = 0,1$  et 0,2 m/s de la vitesse des bulles dans le lit de  $D_T = 0,07$  m.

Variations of constant frequencies obtained for  $(U - U_o) > 0,08 (gD_T)^{0,5}$  into 0,02 and 0,07 m diameter beds against the height above the distributor and the incipient fluidization velocity of the powders fluidized. In parallel bubbles velocities into the  $D_T = 0,07$  m diameter bed with  $(U - U_o) = 0,1$  and 0,2 m/s.

De la figure 16 on déduit l'équation (19) entre  $f_{BP}$  ( $s^{-1}$ ) et  $U_{mf}$  (cm/s) avec  $h_{so}/D_T > 10$  ;  
 $(U - U_o) > 0,08 (gD_T)^{0,5}$  ;  
 $0,02 < D_T < 0,071$  m ;  
 $0,16 < U_{mf} < 0,75$  cm/s :

$$f_{BP} = 2(0,2/U_{mf})^{0,45}(20D_T/h_{so})^{0,5}(0,02/D_T)^{0,4} \quad (19)$$

On remarquera qu'à  $h_{so}$  constant,  $f_{BP}$  ne dépend que très peu de  $D_T$ .

Cette relation montre que la fréquence à laquelle les bulles éclatent au sommet d'un réacteur de laboratoire est mesurable avec un chronomètre (avec  $U_{mf} = 0,2$  cm/s et  $h_{so} = 20D_T$ ,  $f_{BP} = 120$ /min pour  $D_T = 0,02$  m et 73/min pour  $D_T = 0,071$  m). D'où, une méthode très simple pour attribuer une valeur  $U_{mf}$  de comportement à un catalyseur en opération : on mesure  $f_{BP}$ , puis calcule  $U_{mf}$  avec l'équation (19).

**1.4.4 Vitesse des bulles pour  $D_T = 0,02$  et  $0,071$  m**

Quelques valeurs mesurées de la vitesse  $U_A$  des bulles ont été portées sur la figure 16 où, à  $(U - U_o)$  constant, elles se montrent indépendantes des fréquences et de la distance au distributeur. Ces propriétés ont déjà été rencontrées dans les lits à bulles libres.

Des résultats obtenus avec  $D_T = 0,071$  m pour une poudre ( $U_{mf} = 0,48$  cm/s), différentes hauteurs ( $8 < h_{so}/D_T < 35$ ) et

deux distributeurs ont été portés en fonction de  $U$  sur la figure 17a. Les mêmes mesures ont été faites avec  $D_T = 0,02$  m et cinq poudres ( $0,14 < U_{mf} < 1,7$  cm/s) à différentes hauteurs ( $10 < h_{so}/D_T < 40$ ), puis portées sur la figure 17b. L'ensemble de ces résultats peut se résumer ainsi :

Pour  $(U - U_o) > 0,08(gD_T)^{0,5}$  et  $h_{so}/D_T > 10$ , on obtient :

$$U_A = (U - U_o) + U_{BX} \quad (20)$$

C'est la même relation que celle déduite des courbes d'expansion. Les valeurs de  $U_{BX}$ , uniquement fonction de  $U_{mf}$ , sont en parfait accord avec celles déduites des courbes d'expansion (voir la figure 7 où elles sont comparées).

Pour  $(U - U_o) < 0,08(gD_T)^{0,5}$  et  $h_{so}/D_T > 10$ , on déduit des figures 17a et 17b :

$$U_A = a(U - U_o) + U_{BT} \quad (21)$$

$$\text{avec } U_{BT} = 0,35(gD_T)^{0,5} \quad (22)$$

$$a = 1,60 (0,3/U_{mf}) \quad (23)$$

**1.4.5 Quelques conclusions sur le phénomène bulles**

Le phénomène bulles dépend directement de  $U_{mf}$ .

Les bulles ont la même vitesse avant et après coalescence.

Un appareil de  $D_T = 0,25$  m peut être considéré comme un lit à bulles libres si  $U_{mf} < 0,3$  cm/s et est donc dans ces conditions représentatif d'un lit industriel.

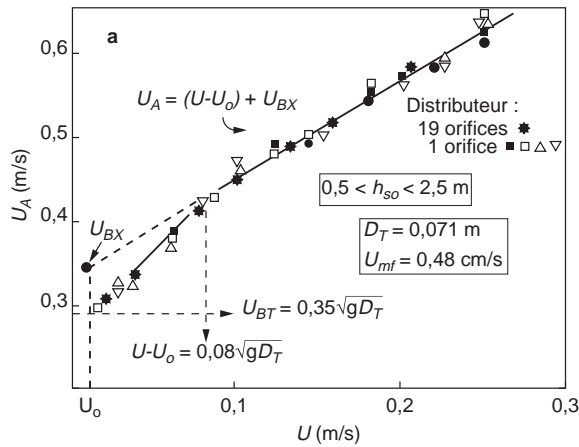


Figure 17a

Vitesse des bulles dans un lit de  $D_T = 0,07$  m en fonction de la vitesse du gaz, de la distance au distributeur et de sa géométrie pour une poudre de  $U_{mf} = 0,48$  cm/s. Vitesses caractéristiques :  $U_{BX}$ ,  $U_{BT}$  et  $(U - U_o) = 0,08 (gD_T)^{0,5}$ .

Variations of bubbles velocity into a  $D_T = 0.07$  m diameter bed against superficial gas velocity, height above the distributor and design of distributor for a powder of incipient fluidization velocity  $U_{mf} = 0.48$  cm/s. Characteristics velocities:  $U_{BX}$ ,  $U_{BT}$  and  $(U - U_o) = 0,08 (gD_T)^{0.5}$ .

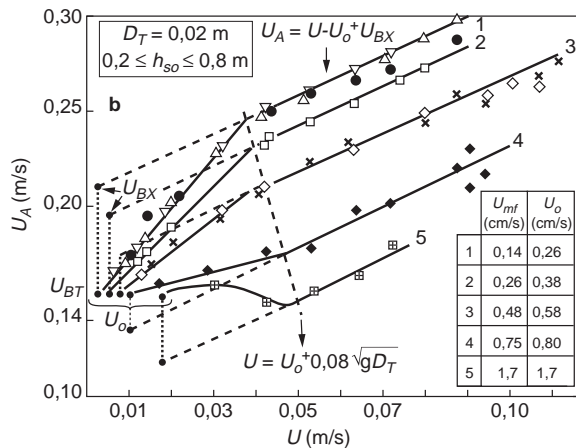


Figure 17b

Vitesses des bulles dans un lit de  $D_T = 0,02$  m en fonction de la vitesse des gaz pour différentes poudres.

Variations of bubbles velocity into a  $D_T = 0.02$  m diameter bed against superficial gas velocity and incipient fluidization velocities of powder fluidized.

## 1.5 Contacts gaz/solide et transferts

### 1.5.1 Objectifs et méthodes de mesure

L'objectif est d'établir des corrélations entre les hauteurs d'unité de transfert  $H_{OK} = h_o/N_{OK}$  et d'unité de mélange axial  $H_{OE} = h_o/N_{OE}$  et  $U_{mf}$  pour des lits pistonnants (lits de laboratoire) et des lits à bulles libres (lits d'unités pilotes et industrielles)<sup>1</sup>.

Les études d'extrapolation avec un pilote ont montré que  $H_{OK}$  est indépendant du diamètre de l'appareil si celui-ci est supérieur à 0,25 m et si les poudres utilisées sont fines et donnent une fluidisation de qualité. Si l'on prend aussi en compte les courbes d'isofréquence de la figure 13, l'étude des lits à bulles libres peut être conduite avec des poudres de  $U_{mf} < 0,4$  cm/s dans un appareil de  $D_T = 0,25$  m.

Les mesures ont été faites avec un gaz traceur non adsorbable (hélium), en utilisant des méthodes dérivées de celles de May (1959) pour  $H_{OK}$  et de Gilliland (1949) et Van Deemter (1961) pour  $H_{OE}$ <sup>(1)</sup>.

### 1.5.2 Transfert entre les bulles et le gaz de la phase dense

#### Lits à bulles libres

Les résultats des mesures sont illustrés par les figures 18 et 19.

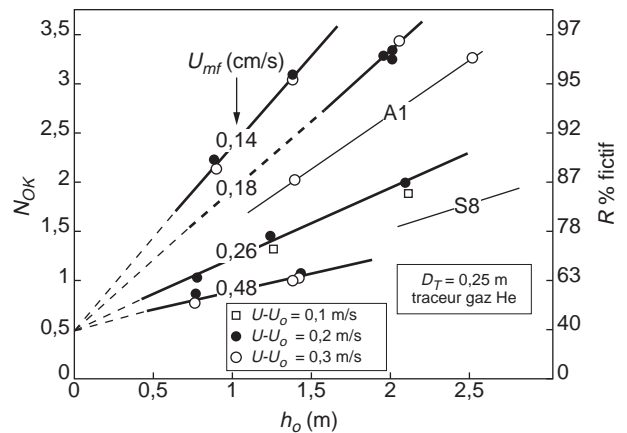


Figure 18

Nombre d'unités de transfert en fonction de la hauteur de phase dense pour un lit à bulles libres de  $D_T = 0,25$  m, différentes poudres et vitesses de gaz.  $A_1$  est un support de catalyseur de craquage catalytique et  $S_8$  un sable de même granulométrie.

Variations of the number of units transfer ( $N_{OK}$ ) into a  $D_T = 0.25$  m diameter free bubbling bed against height of dense phase, incipient fluidization velocities of powders and superficial gas velocity.  $A_1$  is a cracking catalytic carrier and  $S_8$  a same granulometry sand.

Des appareils de  $D_T = 0,02$  et  $0,7$  m sont des lits à bulles gênées et pistonnantes. Ils sont représentatifs des lits de laboratoire.

Il y a un accord parfait entre les valeurs de  $U_{BX}$  déduites des courbes d'expansion et celles issues de la mesure de la vitesse des bulles.

Les conditions d'utilisation conseillées pour les lits de laboratoire sont :  $(U - U_o) > 0,08(gD_T)^{0,5}$  et  $h_{so}/D_T > 10$ .

(1) Voir les annexes et la première partie de l'article.

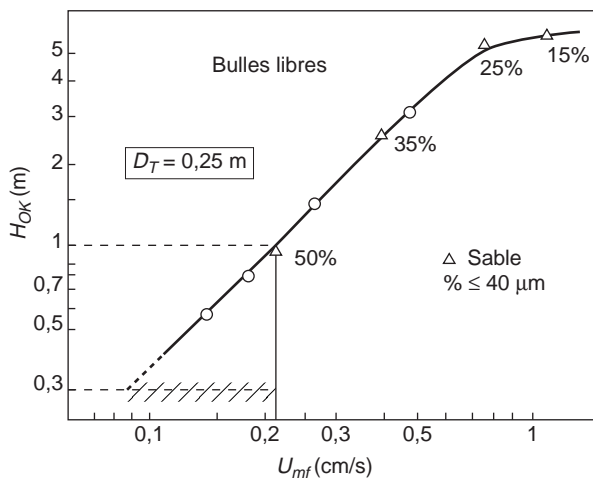


Figure 19

Hauteur de l'unité de transfert mesurée en hauteur de phase dense pour un lit à bulles libres en fonction de la vitesse minimum de fluidisation de la poudre fluidisée.

Variations of the height (measured in dense phase) of a transfer unit into a free bubbling bed against incipient fluidization velocity of powder fluidized.

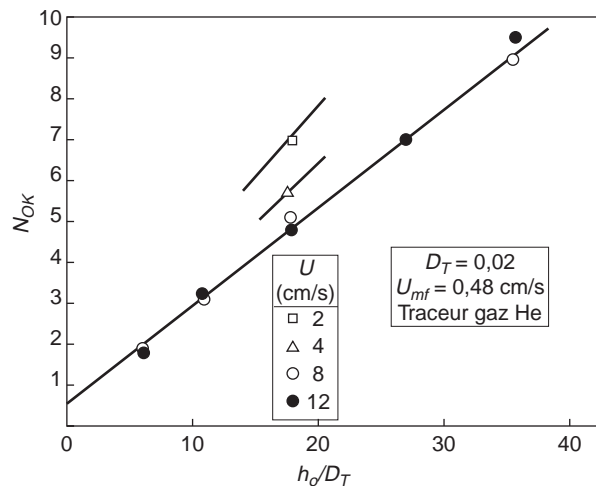


Figure 20

Nombre d'unités de transfert observées avec un lit de  $D_T = 0,02$  m pour  $U_{mf} = 0,48$  cm/s.

Variations of the number of units transfer into a  $D_T = 0,02$  m diameter bed (slugging bed) against height of dense phase bed and superficial gas velocity with an incipient fluidization velocity powder of  $U_{mf} = 0,48$  cm/s.

La figure 18 donne  $N_{OK}$  en fonction de  $h_o$ ,  $(U - U_o)$ , et  $U_{mf}$  pour  $D_T = 0,25$  m.  $H_{OK}$  est indépendant de  $(U - U_o)$ . L'effet bénéfique du distributeur est représenté par  $N_{OK} = 0,5$ . Cet effet a été constaté et étudié sur des réacteurs chimiques de laboratoire et des pilotes, et exposé en détail dans le premier article.

Sur cette même figure, l'avancement  $R$  fictif d'une réaction du premier ordre qui ne serait freinée que par le contact gaz/solide a été porté parallèlement à  $N_{OK}$ . On notera que pour  $U_{mf} > 0,5$  cm/s,  $R$  est limité à 70 % environ. Rappelons que  $R$  n'est pas affecté par le mélange de la phase dense et qu'il est donné par :

$$L_N[1/(1-R)] = h_o/(H_{OR} + H_{OK}) \quad (24)$$

Dans cette équation, si l'avancement n'est pas freiné par la vitesse de réaction, on peut prendre  $H_{OR} = 0$ . Ainsi, pour  $N_{OK} = h_o/H_{OK} = 3$ , on a  $R = 0,95$ .

La figure 19 donne  $H_{OK}$  en fonction de  $U_{mf}$ . Aux valeurs extraites de la figure 18, nous avons ajouté celles relatives à quatre poudres (sable) obtenues en ajoutant des particules fines de moins de 40  $\mu\text{m}$  à des particules grossières de 150  $\mu\text{m}$ . Cette figure indique que pour  $U_{mf} < 0,5$  cm/s et  $(U - U_o) > 0,1$  m/s, on a :

$$H_{OK} = 0,9(U_{mf}/0,2)^{1,25} \quad (25)$$

La zone  $0,3 < H_{OK} < 1$  m évite le domaine des lits mousants signalé par de Vries *et al.* (1972), sans imposer au lit une trop grande hauteur pour obtenir une bonne performance. ( $h_o < 10$  m pour  $N_{OK} = 8$  à 10). Elle correspond à  $0,08 < U_{mf} < 0,22$  cm/s.

Rappelons que l'immersion d'un échangeur industriel est sans effet sur  $H_{OK}$ .

#### Lits à bulles pistonantes

Il a été observé (première partie de l'article) avec une réaction chimique que  $H_{OK}$  est d'abord proportionnel à  $(U - U_o)$ , puis en devient indépendant pour  $(U - U_o) > 0,12(gD_T)^{0,5}$ . Ceci se confirme sur la figure 20.

Celle-ci donne, à titre d'exemple, pour  $D_T = 0,02$  m :  $N_{OK}$  en fonction de  $h_o$  et de  $(U - U_o)$  pour  $U_{mf} = 0,48$  cm/s.  $N_{OK}$  devient indépendant de  $(U - U_o)$  pour  $(U - U_o) > 5$  cm/s. L'effet bénéfique du distributeur apparaît être de l'ordre de  $N_{OK} = 0,5$ .

La figure 21 donne les valeurs de  $D_T/H_{OK}$  indépendantes de  $(U - U_o)$  en fonction de  $U_{mf}$ . On en déduit :

$$- \text{ pour } U_{mf} < 1,5 \text{ cm/s, } D_T/H_{OK} = 0,23 \quad (26)$$

$$- \text{ pour } U_{mf} > 1,5 \text{ cm/s, } D_T/H_{OK} = 0,23 + 0,03(U_{mf} - 1,5) \quad (27)$$

#### Observations complémentaires

Le coefficient de diffusion du gaz traceur n'a aucune incidence sur les valeurs de  $H_{OK}$  dans les lits à bulles libres (de Vries *et al.*, 1972). Il en est de même dans les lits pistonants, si l'on considère les points de la figure 21 (chimie et traceurs). Selon Guedes de Carvalho et Harrison (1975), le coefficient de diffusion aurait une influence modérée ; mais leurs travaux ne respectent pas la condition  $(U - U_o) > 0,12(gD_T)^{0,5}$ .

#### 1.5.3 Mélange du gaz de la phase dense

La figure 22 donne les valeurs mesurées de  $H_{OK}/H_{OE} = N_{OE}/N_{OK}$  en fonction de  $(U - U_o)$ ,  $D_T$  et  $U_{mf}$ . Les résultats de la littérature adaptables à cette représentation y figurent mais sont



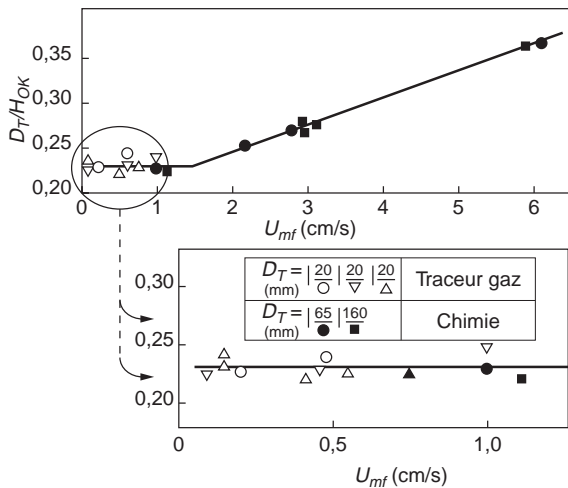


Figure 21

Hauteur de l'unité de transfert dans des lits de laboratoire pour différentes poudres à des vitesses de gaz  $(U - U_o) > 0,12 (gD_T)^{0,5}$ .

Variation of the height of a transfer unit (measured in dense phase or settled bed) into laboratory beds (slugging bed) against  $U_{mf}$  for  $(U - U_o) > 0.12 (gD_T)^{0.5}$ .

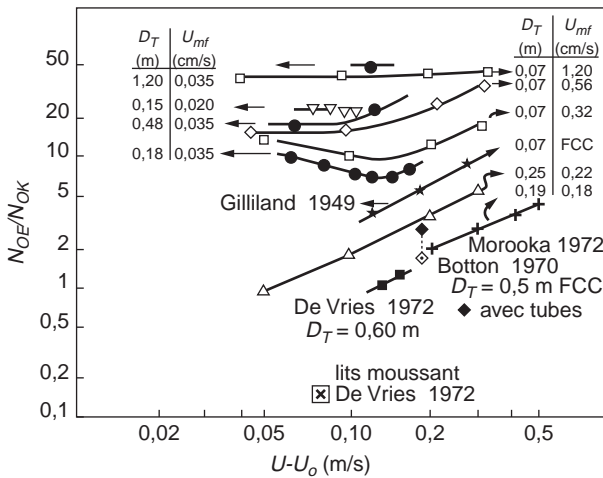


Figure 22

Dispersion axiale du gaz de la phase dense en fonction de la vitesse des gaz pour différents diamètres de lit et différentes poudres.

Variation of the dense phase gas axial dispersion against superficial gas velocity, bed diameter and incipient fluidization of powder fluidized.

insuffisants pour établir des corrélations. Toutefois, en vue d'en exprimer les tendances, nous avons retenu les relations suivantes pour le domaine  $(U - U_o) > 0,1$  m/s et  $D_T > 0,035$  m :

– lits à bulles libres :

$$N_{OE}/N_{OK} = 1,25 [(U - U_o)/0,1][U_{mf}/0,2] \quad (28)$$

– lits pistonnants :

$$N_{OE}/N_{OK} = 3,3 [(U - U_o)/0,1][U_{mf}/0,2][0,1/D_T] \quad (29)$$

L'effet de mélange diminue ( $H_{OK}/H_{OE} = N_{OE}/N_{OK}$  augmente) si l'on évolue vers les lits pistonnants, si  $U_{mf}$  augmente, si l'on immerge un échangeur industriel ou si  $(U - U_o)$  augmente. Dans ces deux derniers cas,  $H_{OK}$  est inchangé.

### 1.6 Analyse dimensionnelle et résultats expérimentaux

L'objectif est de confronter les suggestions de l'analyse dimensionnelle avec nos résultats.

Si  $U_{mf} < 1,5$  cm/s, toutes les propriétés sont fonction de  $U_{mf}$ . Le lit est constitué de deux phases : la phase bulles et la phase dense. Les zones défluidisées n'apparaissent que pour  $U_{mf} > 1,5$  cm/s.

La tension superficielle entre les deux phases est nulle. Seules les forces de gravité, d'inertie et de viscosité interviennent. Si l'on néglige les grandeurs relatives au gaz des bulles, comme la densité et la viscosité, par rapport à celles de la phase dense, ces trois forces conduisent aux deux grandeurs sans dimension suivantes :

– le nombre de Reynolds :

$$Re = (\rho_d U_R D_{BM}) / \mu_d \quad (30)$$

– le nombre de Froude :

$$Fr = U_R^2 / 2gD_{BM} \quad (31)$$

$D_{BM}$  caractérise la dimension des cavités.  $U_R$  est leur vitesse de glissement par rapport à la phase dense ( $U_{BX}$  dans nos corrélations).  $\mu_d$  est la viscosité de la phase dense et  $\rho_d$  sa masse spécifique.

Soit  $R_1$  et  $F_1$  les valeurs de Re et de Fr lorsque la phase dense et les cavités sont en équilibre dynamique. En explicitant  $U_R$  et  $D_{BM}$ , on obtient :

$$U_R^3 = g(F_1 \cdot R_1)(\mu_d / \rho_d) \quad (32)$$

$$D_{BM}^3 = g(F_1 \cdot R_1)(\mu_d / \rho_d)^2 \quad (33)$$

Si nous associons les équations (32) et (33) à notre corrélation (17) :  $\mu_d/\rho_p = 0,5(U_{mf}/0,2)$ , on obtient :

$$U_R = k_1(U_{mf})^{0,33} \quad (34)$$

$$D_{BM} = k_2(U_{mf})^{0,66} \quad (35)$$

L'équation (34) est à confronter à la corrélation (11) :  $U_{BX} = U_R = 0,88(U_{mf}/0,2)^{0,36}$ . L'exposant de la corrélation (11) est très voisin de celui prévu par l'équation (34).

L'équation (35) serait à confronter à une corrélation entre  $D_{BM}$  et  $U_{mf}$  qui n'a pas été établie.

Si nous prenons pour  $F_1$  la valeur proposée par Davidson et Harrison (1963) pour les bulles isolées (celle du régime de Taylor des systèmes gaz-liquide :  $U_R = (2gD_{BM})^{0,5}$  soit  $F_1 = 0,71/20,5$ ), on obtient :

$$D_{BM} = 0,16(U_{mf}/0,2)^{0,72} \quad (36)$$

Cette relation est très proche de l'équation (35).

Si  $U_{mf} > 1,5$  cm/s, le lit est constitué de trois phases : la phase bulles, la phase dense et une phase de particules défluidisées. Dans ces conditions, la corrélation (18) entre  $\mu_d$  et  $U_{mf}$  est  $\mu_d/\rho_p = 3,5$ . Lorsque l'équilibre dynamique est atteint :  $U_R$  et  $D_{BM}$  sont fixés, quelle que soit la poudre. C'est ce qui a été trouvé lors de l'étude du phénomène bulles. La cartographie des lits à particules grossières est indépendante de la taille des particules. Ce sont des lits à bulles évolutives, gênées, pistonantes.

## Conclusions

Toutes les propriétés examinées avec des gaz et des poudres inertes ont pu être corrélées en fonction de leur vitesse minimale de fluidisation  $U_{mf}$ . Ainsi, une poudre peut être caractérisée par un seul paramètre.

Ces relations permettent d'attribuer une valeur de «  $U_{mf}$  de comportement » à un catalyseur en activité dans un appareil de laboratoire. On mesure la valeur d'une propriété du lit et l'on calcule avec la relation relative à cette propriété la valeur de  $U_{mf}$  qui lui correspond. Cette valeur autorise le calcul, toujours avec ces relations établies en milieu inerte, dans les mêmes conditions chimiques, des performances du catalyseur (en contact gaz/solide, par exemple) dans un autre appareil.

Ces relations permettent d'écrire les relations établissant les conditions à respecter en laboratoire pour simuler le comportement d'une unité industrielle donnée.

Les phénomènes sont dépendants de  $U_{mf}$  si  $U_{mf} < 1,5$  cm/s et indépendants si  $U_{mf} > 1,5$  cm/s. Cette transition correspond à la fin de l'expansion de la phase dense ( $U_o = U_{mf}$ ) et à l'apparition dans le lit de zones défluidisées près des bulles.

Le domaine des lits catalytiques performants correspond à  $0,3 < H_{OK} < 1$  m, soit  $0,08 < U_{mf} < 0,22$  cm/s. On doit éviter les lits moussants décrits par de Vries *et al.* (1972), non maîtrisables, pour lesquels  $H_{OK}$  est voisin de 0,1 m, soit, par extrapolation de l'équation (25),  $U_{mf} = 0,03$  cm/s. La courbe de  $U_{BX}$  en fonction de  $U_{mf}$  donnée figure 7 pour  $D_T = 0,02$  m (sous la notation air humide) a tendance à rejoindre celle correspondant à  $D_T = 0,25$  m et relative aux bulles libres pour  $U_{mf} = 0,04$  cm/s à  $U_{BX} = 0,45$  m/s. À ce niveau, les bulles seraient assez petites pour ne pas être gênées dans un tube de diamètre  $D_T = 0,02$  m.

Dans tous les lits, la fréquence des bulles évolue puis tend à se stabiliser lorsque l'on s'éloigne du distributeur. Parallèlement, leur vitesse et  $H_{OK}$  sont constantes et donc indépendantes de la taille des bulles. Tout se passe comme si

un état d'équilibre dynamique entre phase dense et phase bulles était anticipé par association des bulles dès leur formation. Le diamètre  $D_{BM}$  des bulles, déduit des valeurs de  $U_{BX}$  en supposant qu'elles se déplacent en régime de Taylor, est un diamètre fictif.

Le modèle phénoménologique de May (1959) à deux paramètres devient un modèle à un paramètre (modèle à  $U_{mf}$  proposé par Botton).

Les poudres peuvent alors être classées selon les critères suivants :

- $U_{mf} < 0,1$  cm/s : lorsque l'on arrive à réaliser ces faibles vitesses, en minimisant les forces d'adhésion entre les particules, on évolue vers les lits moussants signalés par De Vries *et al.* (1972) ;
- $0,1 < U_{mf} < 1,5$  cm/s : les lits ont deux phases, une phase bulles et une phase dense. Toute la poudre est sous forme de suspension dans la phase dense. Les propriétés de ces lits sont très sensibles aux caractéristiques des particules qui se globalisent en un seul paramètre, fonction de l'environnement physico-chimique : la valeur de «  $U_{mf}$  de comportement » ;
- $U_{mf} > 1,5$  cm/s : les lits ont trois phases : la phase bulles, la phase dense et la phase des zones de particules défluidisées. Leurs propriétés n'ont aucune sensibilité aux caractéristiques des particules, sauf dans des cas extrêmes. On atteint la limite de leur domaine lorsque les vitesses  $U_{mf}$  tendent vers celles des bulles, qui en sont indépendantes.

## 2 UTILISATION DES RELATIONS

Nous verrons ici comment il est possible de calculer toutes les caractéristiques d'un lit fluidisé industriel à partir de quelques données, et de le simuler en laboratoire pour la chimie. Puis nous en déduisons une stratégie utilisable pour améliorer le catalyseur d'une unité industrielle ou pour conduire une extrapolation, ceci uniquement avec des données de laboratoire. Nous avons rassemblé dans le tableau 1 les relations les plus importantes parmi celles établies ci-dessus.

### 2.1 Calcul des caractéristiques d'un lit industriel

L'évolution d'un système réactionnel peut être suivie par la disparition de l'un de ses réactifs. Il est souvent possible de l'exprimer en supposant une réaction du premier ordre.

Imaginons un lit fluidisé industriel très performant, défini par les conditions suivantes :

$$\begin{aligned} h_o &= 6 \text{ m} \\ (U - U_o) &= 0,5 \text{ m/s} \\ h_T &= 20 \text{ m} \\ R &= 0,995 \\ k_o &= 1,25 \text{ s}^{-1}. \end{aligned}$$

TABLEAU 1

Relations expérimentales principales du modèle à  $U_{mf}$  (Botton, 1980)  
 Système d'unités : SI (kg, m, s, sauf  $U_o$  et  $U_{mf}$  en cm/s)  
 Model  $U_{mf}$  Basic experimental relations (Botton, 1980)  
 Unit system: SI (kg, m, s, except  $U_o$  and  $U_{mf}$  in cm/s)

RAPPELS RELATIFS AUX NOMBRES SANS DIMENSION		
$N_{OK} = \frac{k_o h_o}{U - U_o} = \frac{h_o}{H_{OK}}$	$N_{OE} = \frac{U - U_o}{fd \cdot E_o/h_o} = \frac{h_o}{H_{OE}}$	$N_{OR} = \frac{k_o h_o}{U - U_o} = \frac{h_o}{H_{OR}}$
PROPRIÉTÉS DE LA PHASE DENSE		
Vitesse superficielle du gaz	$U_{mf} \leq 1,5$ cm/s, $U_o$ en cm/s	
Volume/unité de section	$U_o = 0,35 (U_{mf}/0,2)^{0,75}$	
	$h_o = h_{mf} [1 + (U_o - U_{mf})/9U_{mf}]$	
RELATIONS POUR ÉTABLIR LES CONDITIONS DE SIMULATION		
	Lits à bulles libres	Lits de laboratoire
Limites générales	$U - U_o \geq 0,10$ m/s $0,08 \leq U_{mf} \leq 0,5$ cm/s $D_T \geq 0,25$ m $h_o > 2$ m	$U - U_o \geq 0,12 \sqrt{g D_T}$ $0,1 \leq U_{mf} \leq 1,5$ cm/s $0,02 \leq D_T > 0,07$ m $h_{mf} / D_T > 10$
Expansion	$U_{BX} = 0,88 (U_{mf}/0,2)^{0,36}$	Voir figure 7
Transfert	$H_{OK} = 0,9 (U_{mf}/0,2)^{1,25}$	$H_{OK} = 4,35 D_T$ ( $h_{mf}/D_T > 4$ )
Dispersion	$\frac{H_{OK}}{H_{OE}} = 1,25 \quad \frac{U_{mf}}{0,2} \quad \frac{U - U_o}{0,1}$	$\frac{H_{OK}}{H_{OE}} = 3,3 \quad \frac{U_{mf}}{0,2} \quad \frac{U - U_o}{0,1} \quad \frac{0,1}{D_T}$ ( $D_T \geq 0,035$ ( $U - U_o$ ) $\geq 0,1$ )
Réaction	$L_N \frac{C_o}{C_s} = L_N \frac{1}{1 - R} = \frac{h_o}{H_{OK} + H_{OR}}$	
$U_{mf}$ de comportement : MESURE SOUS CONDITIONS DE SIMULATION EN LABORATOIRE		
Viscosité : $U_{mf}/0,02 = 2 (\mu_d/\rho_p)$		( $\mu_d/\rho_p$ en stokes = $10^{-4}$ m <sup>2</sup> /s)
Fréquence : $U_{mf}/0,02 = (2/f_{BP})^2 \cdot (20D_T/h_{so})^{0,5} \cdot (0,02/D_T)^{0,4}$		

$h_T$  est la hauteur totale,  $R$  est l'avancement de la réaction,  $k_o$  est la constante cinétique.

**2.1.1 Calcul de  $N_{OR}$  et  $H_{OR}$**

$$H_{OR} = (U - U_o)/k_o = 0,5/1,25 = 0,4 \text{ m}$$

d'où  $N_{OR} = h_o/H_{OR} = 15$

**2.1.2 Calcul de  $H_{OK}$ ,  $N_{OK}$  et  $U_{mf}$**

L'avancement de la réaction est donné par l'équation (24). Avec  $R = 0,995$ ,  $h_o = 6$  m et  $H_{OR} = 0,4$  m, on obtient :  $H_{OK} = 0,75$  m et  $N_{OK} = 8$ .

$U_{mf}$  est donné par l'équation (25). Pour  $H_{OK} = 0,75$  m, on a :  $U_{mf} = 0,173$  cm/s. La valeur de  $U_{mf}$  de comportement étant maintenant connue, toutes les propriétés sont calculables.

**2.1.3 Calcul de  $N_{OE}$  et  $H_{OE}$**

Le lit est à bulles libres. Donc  $N_{OE}$  est donné par l'équation (28).

Avec  $U_{mf} = 0,173$  cm/s et  $(U - U_o) = 0,5$  m/s,

on obtient  $N_{OE}/N_{OK} = H_{OK}/H_{OE} = 5,3$ .

Comme  $H_{OK} = 0,75$  m et  $N_{OK} = 8$ ,

on a  $H_{OE} = 0,14$  et  $N_{OE} = 42$ .

**2.1.4 Calcul de  $U_{BX}$ ,  $h$ ,  $U_o$ ,  $\phi$ , et  $h_o/h_{mf}$**

En appliquant les équations (11), (6), (7) et (13), on obtient :

$$U_{BX} = 0,83 \text{ m/s}$$

$$U_o = 0,27 \text{ cm/s}$$

$$h_o/h_{mf} = 1,06$$

$$h = 9,6 \text{ m}$$

$$\phi = 0,5.$$

### 2.1.5 Calcul de $\theta_T$ temps de séjour total des réactifs

$$\theta_T \# (h_T - \varepsilon_{mf} \cdot h_{mf})/U \text{ avec } \varepsilon_{mf} = 0,5$$

On obtient :  $\theta_T = 34$  s.

Si un échangeur industriel (tubes verticaux de 80 mm espacés de 165 mm et de 6 m de haut par exemple) est immergé dans le lit,  $N_{OK}$  n'est pas modifié ;  $N_{OR}$  est diminué de la fraction volumique du lit occupé par l'échangeur (environ 20 %).

La valeur de  $h_o$  fait partie des données. Si elle n'est pas accessible, on peut la remplacer par la hauteur du lit au repos majorée de 5 à 10 %.

## 2.2 Simulation en laboratoire d'un réacteur industriel

Pour couvrir toutes les situations, les deux réacteurs doivent offrir aux réactifs le même nombre d'unités de transfert, de réaction, de mélange et le même temps de séjour total. Examinons si ceci est réalisable avec un appareil de laboratoire de  $D_T = 0,05$  m, dont les caractéristiques seront repérées avec l'exposant<sup>+</sup>. L'atelier industriel choisi est celui décrit ci-dessus.

### 2.2.1 Égalité des nombres d'unités de transfert :

$$N_{OK} = N_{OK}^+$$

Cette condition entraîne :  $h_o^+ / h_o = H_{OK}^+ / H_{OK}$  avec  $H_{OK} = 0,75$  m et  $h_o = 6$  m.

L'équation (26) permet de déduire :  $H_{OK}^+ = 0,22$  m et  $h_o^+ = 1,74$  m.

La condition :  $N_{OK} = N_{OK}^+$  impose la quantité de catalyseur mais pas  $U_{mf}$

### 2.2.2 Égalité des nombres d'unités de réaction :

$$N_{OR} = N_{OR}^+$$

Cette condition entraîne :  $k_o h_o / (U - U_o) = k_o^+ h_o^+ / (U - U_o)^+$ .

Si l'on utilise le même catalyseur ( $k_o^+ = k_o$ ), on obtient pour  $(U - U_o) = 0,5$  m/s :  $(U - U_o)^+ = 0,145$  m/s.

La condition de validité :  $(U - U_o)^+ > 0,12(gD_T)^{0,5}$  est  $(U - U_o)^+ > 0,084$ . Elle est respectée.

La condition  $N_{OR} = N_{OR}^+$  impose  $(U - U_o)^+$ .

### 2.2.3 Égalité des temps de séjour : $\theta_T = \theta_T^+$

On obtient :  $h_T^+ = 5,80$  m.

### 2.2.4 Égalité des nombres d'unités de mélange :

$$N_{OE}^+ = N_{OE}$$

Les équations (28) et (29) conduisent pour  $N_{OE}^+ = N_{OE}$  à la relation :

$$U_{mf}^+ / U_{mf} = (1,25/3,3)(D_T + /0,1)[(U - U_o)/(U - U_o)^+]$$

En lui associant  $N_{OR} = N_{OR}^+$  et les équations (25) et (26), on obtient :

$$U_{mf}^+ / U_{mf} = 0,783 (U_{mf}/0,2)^{1,25} (k_o/k_o^+)$$

Donc, pour  $U_{mf} = 0,173$  cm/s, la condition :  $N_{OE}^+ = N_{OE}$  exige :  $U_{mf}^+ / U_{mf} = 0,64 (k_o/k_o^+)$ .

Si l'on choisit  $k_o^+ = k_o$ , on a  $U_{mf}^+ = 0,64 U_{mf}$  quel que soit le diamètre du lit pistonnant utilisé. Réaliser un catalyseur dont la valeur de  $U_{mf}$  de comportement est inférieure à la valeur fixée comme nécessaire pour une performance souhaitée est contraignant, surtout si le catalyseur a tendance à être collant. C'est aussi, *a priori*, se limiter dans la recherche des performances maximales.

Si l'on prend  $U_{mf}^+ = U_{mf} = 0,173$  cm/s, on a  $k_o^+ = 0,64 k_o$ . La condition  $N_{OR} = N_{OR}^+$  doit être revue :  $h_o$  reste le même (1,7 m) mais  $(U - U_o)$  s'abaisse de 0,14 m/s à 0,09 m/s et  $h_T$  de 5,8 m à 4 m. Notons que l'étude d'un catalyseur conduit toujours à examiner plusieurs valeurs de  $k_o$ .

La condition  $N_{OE} = N_{OE}^+$  impose  $U_{mf}$  ou  $k_o/k_o^+$ .

Pour conclure, la simulation est possible même pour les systèmes réactionnels les plus complexes. Dans ce cas, elle est très contraignante sur le plan expérimental. Avec  $D_T = 0,05$  m et  $k_o^+ = k_o$ , il faut  $h_o^+ = 1,74$  m,  $(U - U_o)^+ = 0,14$  m/s,  $h_T = 5,8$  m et  $U_{mf}^+ / U_{mf} = 0,64$ .

Ceci acquis, nous allons essayer d'élaborer une stratégie expérimentale pour effectuer des extrapolations ou des améliorations de catalyseurs à partir de données de laboratoire.

## 2.3 Stratégie suggérée pour une extrapolation ou l'amélioration d'un catalyseur

La difficulté est fonction de la complexité du système réactionnel concerné :

- si toutes les réactions sont catalytiques, la conservation du temps de séjour total est inutile ;
- si la réaction est simple (un seul chemin réactionnel possible), il faut s'assurer que le catalyseur est suffisamment actif ( $k_o > 1$  s<sup>-1</sup>) et apte à donner un bon contact gaz/solide dans une unité industrielle. Un appareil de diamètre  $D_T = 0,02$  m suffit pour les mises au point ;
- si la réaction est complexe, il est proposé de considérer les conditions de simulation calculées ci-dessus comme des valeurs limites. Il est suggéré de commencer les travaux avec une colonne de 0,02 m de diamètre et de 0,5 à 0,75 m de hauteur totale. Une telle colonne ne permet pas d'obtenir de très hauts taux de transformation, ni de voir les effets du mélange. Mais elle permet de faire de nombreuses expériences avec très peu de contraintes. Notons qu'avec cette colonne, il faudrait  $h_o = 0,7$  m pour obtenir une transformation à 99,5 % avec  $k_o = 1,25$  s<sup>-1</sup>.

Avec cet appareil, étant donné les faibles quantités de catalyseur et de réactifs nécessaires, il est facile de prospecter tous les paramètres souhaités relatifs à la préparation du catalyseur et aux conditions opératoires : hauteur du lit, vitesse des gaz, composition du mélange réactionnel, etc. La hauteur de l'unité de transfert  $H_{OK}$  est, dans cet appareil, indépendante de  $U_{mf}$  pour  $U_{mf} < 1,5$  cm/s. Ceci permet d'étudier

toutes les performances chimiques du catalyseur (activité, sélectivité, etc.) sans effets de mélange, avec des catalyseurs dont la dimension des particules est choisie pour leur facilité de fabrication et l'absence d'entraînement notable à l'état fluidisé.

Il est souhaitable d'expérimenter en parallèle avec un réacteur à phase gaz parfaitement mélangée et en contact parfait avec le catalyseur, du type panier tournant ou à turbine de mélange, ceci afin d'améliorer les connaissances relatives à la chimie et d'établir les équations cinétiques.

Après l'étude du catalyseur du point de vue chimique, l'objectif sera de faire évoluer ses propriétés physiques pour obtenir  $0,08 < U_{mf} < 0,2$  cm/s (soit  $0,3 < H_{OK} < 1$  m) dans un lit industriel. L'évolution doit être suivie en mesurant sur le catalyseur en opération une propriété physique reliée précédemment à  $U_{mf}$  avec un gaz et des poudres inertes. Les relations données ci-dessus peuvent être utilisées, à moins que l'expérimentateur établisse les siennes. Rappelons leur domaine de sensibilité :

- chute de pression (avec  $D_T = 0,02$  m)  $U_{mf} > 0,5$  cm/s
- fluctuation de pression  $0,1 < U_{mf} < 1$  cm/s
- viscosité  $0,2 < U_{mf} < 1,5$  cm/s
- expansion du lit  $0,3 < U_{mf} < 1$  cm/s
- fréquence des bulles  $U_{mf} < 0,25$  cm/s

Nous sommes dans le domaine des particules fines. Pour diminuer  $U_{mf}$ , il faut en règle générale diminuer les forces de cohésion entre les particules. Les méthodes classiques consistent à :

- jouer sur la morphologie des grains ;
- limiter les effets de collage liés aux propriétés de la phase active (très important lorsqu'elle est liquide) ;

- ajouter des particules très fines ( $< 40 \mu\text{m}$ ). Ces particules peuvent être selon les circonstances des particules inertes, du catalyseur, des mélanges, etc.

Ces études faites, on aura les données et outils nécessaires pour tester correctement les effets du mélange dans un petit réacteur pilote de 0,07 m de diamètre (fig. 22). C'est la qualité et le contenu des informations recueillies sur la chimie qui diront si cette expérimentation est nécessaire, et si oui, quelle est la méthode la plus élégante pour la conduire.

Parallèlement, on pourra utiliser le modèle de May, ramené à un seul paramètre ( $U_{mf}$ ) pour examiner les tendances qu'il suggère pour la chimie si le système de réactions considéré est complexe. Dans ce cadre, la connaissance des constantes cinétiques est précieuse, car elle permet de calculer en détail les évolutions des compositions selon les conditions de marche (activité du catalyseur en particulier...), et donc de voir si le lit fluidisé convient comme réacteur.

## CONCLUSIONS

Aux conclusions données en fin de la première partie nous pouvons ajouter les suivantes :

La simulation d'une unité industrielle par un appareil de laboratoire est possible sur le plan de la chimie pour des systèmes de réactions complexes. Elle est dans ce cas contraignante.

L'extrapolation avec des données de laboratoire est possible :

- si une seule évolution de la chimie est possible, un appareil de laboratoire de  $D_T = 0,02$  m suffit ;
- si le mélange a une incidence sur la sélectivité,  $D_T = 0,02$  et  $D_T = 0,07$  m sont nécessaires.

## Troisième partie : études théoriques, réalités expérimentales, suggestions

### INTRODUCTION

Lorsque l'on opère dans une maquette de PVC transparent avec des poudres grossières ( $dp = 150 \mu\text{m}$ ) et à vitesse modérée de gaz, on voit se former de très belles bulles. Aussi de nombreux chercheurs ont-ils tenté d'élaborer des modèles mécanistiques, et certains ont étendu leurs études aux lits à particules fines, qui sont ici les seuls qui nous intéressent. Ces modèles mécanistiques sont des modèles à un paramètre : le diamètre des bulles  $D_B$ . Le modèle phénoménologique à  $U_{mf}$  présenté ci-dessus est aussi à un paramètre : la vitesse minimum de fluidisation de comportement  $U_{mf}$ .

Notre objectif est ici de comparer les relations proposées par les modèles mécanistiques aux corrélations expérimentales établies pour l'élaboration du modèle phénoménologique à  $U_{mf}$ . Ainsi l'on pourra préciser les aptitudes des modèles mécanistiques actuels à représenter les faits expérimentaux et suggérer ce qu'il convient de faire, si nécessaire, pour les améliorer.

Avant d'effectuer ces comparaisons, nous présenterons :

- les divers lits fluidisés (et préciserons ceux qui sont concernés) ;
- les corrélations du modèle phénoménologique qui seront utiles ;
- quelques modèles mécanistiques.

### 1 LITS FLUIDISÉS TYPES

Des observations visuelles associées à des mesures de la fréquence et de la vitesse des bulles ont conduit Botton (1980), à ne considérer que trois types de lit, malgré les grandes variations possibles du diamètre des appareils, de la granulométrie de la poudre et de la vitesse du gaz :

- les lits à bulles évolutives ;
- les lits pistonnants ;
- les lits à bulles libres.

Donnons-en une description sommaire :

Avec des particules grossières ( $dp \cong 250 \mu\text{m}$ ), un appareil de diamètre moyen (0,25 m) et une vitesse de gaz modérée ( $U - U_o = 0,10 \text{ m/s}$ ), les bulles les plus grosses qui apparaissent à la surface d'un lit de faible hauteur relative ( $h/D_T < 2$ ) se répartissent sur une couronne dont le diamètre diminue lorsque l'on augmente la hauteur du lit, pour s'annuler à  $h \cong 2D_T$ . Ces lits ( $h/D_T < 2$ ) sont appelés *lits à bulles évolutives*. La cartographie des bulles (diamètres et fréquences) est indépendante de la granulométrie. Si nous augmentons la hauteur du lit, les bulles qui se sont rassemblées au centre du lit à  $h \cong 2D_T$  s'écoulent les unes derrière les autres, coalescent et

deviennent assez grosses pour occuper toute la section de l'appareil. Ces lits ( $h \geq 2D_T$ ) sont appelés *lits pistonnants*.

Si nous prenons des particules très fines ( $dp \cong 40 \mu\text{m}$ ) et augmentons au besoin le diamètre du lit, l'image obtenue est très différente. Le lit est constitué, mis à part la proximité du distributeur, de bulles de taille identique et faible, dont les mouvements ne sont pas gênés par les parois de l'appareil. Ces lits sont appelés *lits à bulles libres*. Mais si l'on opère avec la même poudre dans un lit de laboratoire de quelques centimètres de diamètre, le diamètre des bulles, qui est lui aussi de quelques centimètres, n'est plus négligeable devant celui de l'appareil. On retrouve les images des lits à bulles évolutives et des lits pistonnants décrits ci-dessus.

Le modèle phénoménologique à  $U_{mf}$  est centré sur les lits à particules fines. Ce sont les seules qui permettent de réaliser des lits catalytiques de très hautes performances (> 99,5 %) dans l'industrie chimique. Les couches fluidisées ont 6 à 15 m de haut. Les performances sont très sensibles à la granulométrie du catalyseur et aux forces de cohésion entre les grains. Les lits industriels et les pilotes sont des lits à bulles libres et les lits de laboratoire se rapprochent (ou sont) des lits pistonnants.

Les modèles mécanistiques s'intéressent à tous les lits. Les lits industriels peuvent être des lits à bulles évolutives ou à bulles libres, et ceux de laboratoire des lits pistonnants ou à bulles évolutives.

Dès que l'on quitte le laboratoire, les lits à bulles évolutives traitent des particules grossières (traitements physiques et transformations chimiques non catalytiques). Les performances sur la phase gaz par passe sont faibles (< 90 %). La hauteur des couches fluidisées est de l'ordre du mètre. Au-delà, les bulles sont grosses et les appareils sont soumis à de violentes vibrations. Le contact gaz/solide est alors négligeable et les érosions sont fortes. Pour ces lits, la cartographie des bulles et des propriétés est indépendante de la granulométrie. Quelques aspects en ont été illustrés par des relations expérimentales présentées dans la deuxième partie de l'article.

*Compte tenu de notre objectif, nous ne ferons état que des lits à bulles libres et pistonnants avec des particules fines.*

### 2 MODÈLE PHÉNOMÉNOLOGIQUE À $U_{mf}$

Les corrélations ont été établies dans la deuxième partie de l'article. Les principales sont rassemblées dans le tableau 1, auquel il faut associer la figure 1. Ces corrélations, qui ne dépendent que de  $U_{mf}$ , donnent :

- pour la phase dense : le débit de gaz  $U_o$  qui la traverse, ainsi que son volume  $h_o$  et sa viscosité  $\mu_d$  ;

TABLEAU 1

Relations expérimentales principales du modèle à  $U_{mf}$  (Botton, 1980)  
 Système d'unités : SI (kg, m, s, sauf  $U_o$  et  $U_{mf}$  en cm/s)  
 Model  $U_{mf}$  Basic experimental relations (Botton, 1980)  
 Unit system : SI (kg, m, s, except  $U_o$  and  $U_{mf}$  in cm/s)

RAPPELS RELATIFS AUX NOMBRES SANS DIMENSION		
$N_{OK} = \frac{k_o h_o}{U - U_o} = \frac{h_o}{H_{OK}}$	$N_{OE} = \frac{U - U_o}{fd \cdot E_o/h_o} = \frac{h_o}{H_{OE}}$	$N_{OR} = \frac{k_o h_o}{U - U_o} = \frac{h_o}{H_{OR}}$
PROPRIÉTÉS DE LA PHASE DENSE		
Vitesse superficielle du gaz	$U_{mf} \leq 1,5$ cm/s, $U_o$ en cm/s	
Volume/unité de section	$U_o = 0,35 (U_{mf}/0,2)^{0,75}$ $h_o = h_{mf} [1 + (U_o - U_{mf})/9U_{mf}]$	
RELATIONS POUR ÉTABLIR LES CONDITIONS DE SIMULATION		
	Lits à bulles libres	Lits de laboratoire
Limites générales	$U - U_o \geq 0,10$ m/s $0,08 \leq U_{mf} \leq 0,5$ cm/s $D_T \geq 0,25$ m $h_o > 2$ m	$U - U_o \geq 0,12 \sqrt{g D_T}$ $0,1 \leq U_{mf} \leq 1,5$ cm/s $0,02 \leq D_T > 0,07$ m $h_{mf} / D_T > 10$
Expansion	$U_{BX} = 0,88 (U_{mf}/0,2)^{0,36}$	Voir figure 1
Transfert	$H_{OK} = 0,9 (U_{mf}/0,2)^{1,25}$	$H_{OK} = 4,35 D_T \quad (U_{mf}/D_T > 4)$
Dispersion	$\frac{H_{OK}}{H_{OE}} = 1,25 \quad \frac{U_{mf}}{0,2} \quad \frac{U - U_o}{0,1}$	$\frac{H_{OK}}{H_{OE}} = 3,3 \quad \frac{U_{mf}}{0,2} \quad \frac{U - U_o}{0,1} \quad \frac{0,1}{D_T}$ $(D_T \geq 0,035 \quad (U - U_o) \geq 0,1)$
Réaction	$L_N \frac{C_o}{C_s} = L_N \frac{1}{1 - R} = \frac{h_o}{H_{OK} + H_{OR}}$	
$U_{mf}$ de comportement : MESURE SOUS CONDITIONS DE SIMULATION EN LABORATOIRE		
Viscosité : $U_{mf}/0,02 = 2 (\mu_d/\rho_p)$		$(\mu_d/\rho_p$ en stokes = $10^{-4} \text{m}^2/\text{s})$
Fréquence : $U_{mf}/0,02 = (2/f_{BP})^2 \cdot (20D_T/h_{so})^{0,5} \cdot (0,02/D_T)^{0,4}$		

– pour les lits à bulles libres et les lits pistonants : l'expansion  $h/h_o$ , la hauteur de l'unité de transfert  $H_{OK}$  et la hauteur de l'unité de diffusion  $H_{OE}$  ;

La figure 2 illustre l'effet sur  $U_{mf}$  des interactions entre les particules, lorsqu'elles sont très fines ( $< 50 \mu\text{m}$ ).

### 3 MODÈLES MÉCANISTIQUES À BULLES

#### Introduction

Les divers auteurs ont admis que les propriétés de la phase dense sont celles du lit à sa vitesse minimum de fluidisation  $U_{mf}$  (soit  $U_o = U_{mf}$  et  $h_o = h$ ). Cette approximation est très acceptable sur le plan pratique, ainsi que dans le cadre de cette étude. Tout comme pour le modèle phénoménologique, nous ne considérerons que les lits pistonants et à bulles libres. Davidson et Harrison (1963) présentent ces derniers

comme le résultat de la coalescence des bulles jusqu'à une taille maximum qu'elles conservent.

Les modélisations ont été centrées sur les écoulements du gaz et de la phase dense au voisinage d'une bulle et les échanges entre le gaz de la bulle et celui de la phase dense. De magnifiques photographies sont visibles dans les livres de Davidson et Harrison (1963, 1971). Ces livres font état de nombreuses études théoriques et expérimentales sur des bulles isolées. Nous en rappelons ci-après quelques résultats.

#### 3.1 Hydrodynamique

##### 3.1.1 Vitesse des bulles et expansion des lits

Davidson et Harrison (1963) ont procédé par analogie avec les systèmes gaz-liquide à faible tension interfaciale, tension qui n'existe pas dans les lits fluidisés gaz/solide. De ce fait, ils ont adopté les lois expérimentales de Davies et Taylor

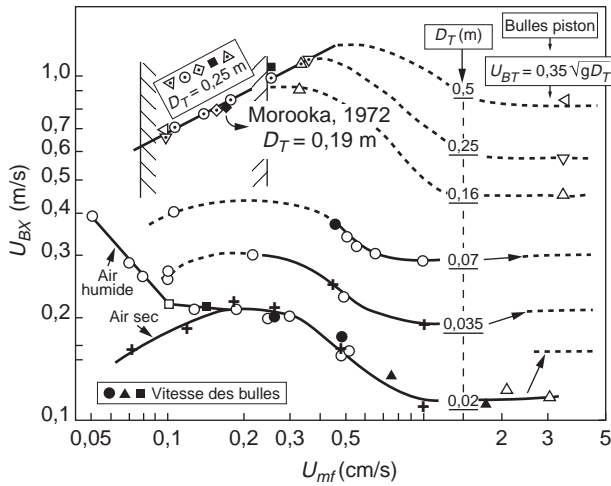


Figure 1

Coefficients d'expansion  $U_{BX}$  dans des lits à bulles libres ( $D_T > 0,25$  m et  $(U - U_o) > 0,1$  cm/s) et des lits pistonnants de laboratoire ( $h_m/D_T > 15$  et  $(U - U_o) > 0,08$  ( $gD_T$ )<sup>0,5</sup>).

Expansion coefficient  $U_{BX}$  into free bubbling beds ( $D_T > 0,25$  m and  $(U - U_o) > 10$  cm/s) and laboratory slugging beds ( $H_m/D_T > 15$  and  $(U - U_o) > 0,08$  ( $gD_T$ )<sup>0,5</sup>) versus incipient fluidization velocity.

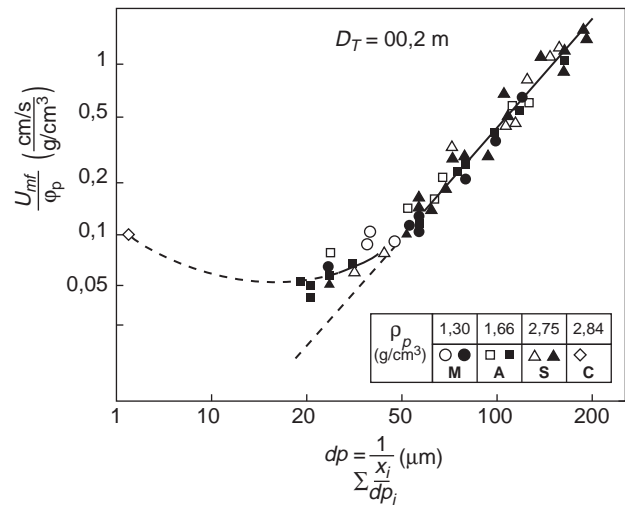


Figure 2

Vitesse minimale de fluidisation en fonction de la dimension des particules pour des poudres à faible (points noirs) et à forte (points blancs) dispersion granulométrique. Illustration de l'effet des interactions entre les particules lorsqu'elles sont très fines.

Variations of incipient fluidization velocity against mean particle diameter into a 0.02-m-diameter tube for large (white points) and narrow (black points) granulometric dispersion. Effect of particles cohesion when they are fine.

(1950) pour les bulles isolées et celles de Nicklin (1962) pour les ensembles de bulles. Ces lois sont :

– vitesse d'une bulle isolée :

$$\text{pistonnante : } U_{BT} = 0,35 (gD_T)^{0,5} \quad (1)$$

$$\text{libre : } U_B = 0,71 (gD_B)^{0,5} \quad (2)$$

$D_T$  est le diamètre du lit.  $D_B$  est le diamètre de la sphère ayant le même volume que la bulle ;

– vitesse d'une bulle dans un ensemble de bulles identiques :

$$U_A = (U - U_o) + U_B \quad (3)$$

– expansion des lits ( $h/h_o$ ) et temps de séjour des bulles ( $\theta_B$ ) :

$$\theta_B = (h - h_o)/(U - U_o) = h/U_A = h_o/U_B \quad (4)$$

Ainsi, le temps de séjour des bulles dans un lit fluidisé à  $(U - U_o)$  est égal, en prenant en compte l'équation (3) au temps de séjour d'une bulle de même taille isolée dans ce lit fluidisé à  $U_o$ .

### 3.1.2 Formation et coalescence des bulles

Chaque bulle entraîne de la phase dense derrière elle (« traînée »). Une bulle viendra coalescer avec une autre dans le

sens vertical si elle est piégée par sa traînée. Davidson et Harrison (1963) ont donné, à l'issue d'études théoriques et expérimentales, des éléments sur la formation des bulles aux orifices des distributeurs et le phénomène de coalescence.

Selon leurs résultats, la distance verticale d'aptitude d'une bulle à en capter une autre est égale à son diamètre. La fréquence d'émission des bulles à un orifice dépend peu du débit pour des vitesses d'émission supérieures à 8 m/s. Elle est suffisante (ordre de 2/s) pour qu'une bulle émise se trouve soumise à l'influence de la traînée de celle qui la précède et puisse ainsi coalescer avec elle.

### 3.1.3 Diamètre maximal des bulles

Nous exposons ici la théorie de Davidson et Harrison (1963).

La circulation de la phase dense en périphérie d'une bulle créée à l'intérieur de celle-ci une circulation descendante de gaz le long des parois, et ascendante au centre. Les auteurs admettent que la vitesse de cette circulation interne est voisine de celle de la bulle par rapport à la phase dense ( $U_B$ ) : si elle est inférieure à la vitesse de chute libre des particules ( $U_f$ ), les particules du fond de la bulle restent au fond ; si elle est supérieure, les particules du fond ont tendance à remplir la bulle, donc à la fragmenter. En conséquence, Davidson et Harrison admettent qu'une bulle atteint son diamètre maximal lorsque  $U_B = U_f$ . Dans le domaine qui nous intéresse (gaz/solide et particules fines), les bulles sont



beaucoup plus grosses que ne le prévoit la théorie. L'écart s'accroît lorsque la finesse des particules augmente. Davidson et Harrison ont noté un facteur 20 pour des particules de 40  $\mu\text{m}$  supposées libres. En fait, les particules fines ont tendance à s'associer. Cette théorie a eu le très grand mérite d'expliquer le phénomène de dimension maximale et de souligner la très grande importance de la granulométrie.

### 3.1.4 Circulation de la phase dense autour d'une bulle Analogies avec le système gaz/liquide

Matheson (1949) et Schügerl (1971) ont montré que la phase dense se comporte comme un fluide newtonien pour les particules fines. Botton l'a confirmé (1980). Des analogies avec les systèmes gaz/liquide classiques sont donc possibles. Il en existe de très pertinentes, que nous présentons ci-dessous.

Supposons tout d'abord que la bulle est une sphère rigide et la phase dense un liquide. Soit  $Re = \rho_L U_B D_B / \mu$  le nombre de Reynolds. Lorsque la vitesse relative  $U_B$  augmente, les lignes de courant adhèrent d'abord à toute la surface de la sphère ( $Re < 1$ ), puis se détachent de la surface arrière ( $Re > 4$ ) en créant un tourbillon torique coaxial à la sphère. Ce tourbillon se transforme ( $Re > 14$ ) ensuite en tourbillons hélicoïdaux, qui périodiquement se détachent de la sphère, puis en microtourbillons ( $Re > 100$ ) attachés à l'arrière de la sphère.

Remplaçons la sphère rigide par une bulle de gaz. Celle-ci se déforme. Pour augmenter sa vitesse  $U_B$  par rapport au liquide, il faut augmenter son volume. Pour caractériser sa déformation, fonction de la tension de surface, on doit introduire le nombre d'Eötvös ( $Et = g(\rho_L - \rho_g) D_B^2 / \sigma$ ). Les résultats peuvent se résumer ainsi :

- les écoulements obtenus à l'arrière de la bulle sont, à même nombre de Reynolds, similaires à ceux observés avec une sphère rigide ;
- les bulles se déforment pour  $Et > 0,4$ , atteignent une vitesse constante (0,23 m/s avec air et eau) pour  $3 < Et < 16$  (régime d'Eötvös), et une vitesse égale à  $0,71(gD_B)^{0,5}$  pour  $Et > 16$  (régime de Taylor). La forme des bulles est très variable en régime d'Eötvös. En régime de Taylor, la forme est celle d'une sphère en partie remplie de liquide. Pour une bulle d'air dans l'eau, le régime de Taylor est obtenu pour  $D_B > 1,2$  cm avec un sillage constitué de microtourbillons ( $U_B > 0,24$  m/s et  $Re > 3000$ ). Ceci persiste jusqu'à  $D_B \cong 3,6$  cm ( $Et \cong 150$ ,  $U_B \cong 0,4$  m/s,  $Re \cong 13\ 300$ ). Au-delà, la bulle se fractionne.

Dans un lit fluidisé gaz/solide, il n'y a pas de tension de surface. S'il existe des analogies avec les systèmes gaz/liquide, on doit retrouver, quelles que soient les circonstances, le régime de Taylor :

- la loi des vitesses a été vérifiée par Davidson et Harrison (1963) ;
- les essais de Rowe (1962) vérifient ce qui concerne la forme et montrent les analogies entre les écoulements.

Rowe a étudié la forme des bulles et les écoulements de la phase dense en leur faisant traverser des lits superposés de particules de couleurs différentes, fluidisés à  $U_{mf}$ . Les bulles prennent alors la forme caractéristique du régime de Taylor. Chaque bulle ressemble à une sphère partiellement remplie de phase dense. Il a appelé la phase dense contenue dans la sphère, *sillage*, et celle entraînée derrière la sphère, *traînée*. Le sillage s'élève à la même vitesse que la bulle et la traînée à une vitesse inférieure. Le sillage est agité par des petits tourbillons si les particules sont fines ( $< 100 \mu\text{m}$ ). Si elles sont grossières ( $> 250 \mu\text{m}$ ), il se forme un tore de particules défluidisées coaxial à la bulle, qui se détache de la bulle chaque fois que celle-ci parcourt une distance égale à son diamètre. Ces écoulements rappellent bien ceux observés en gaz/liquide. Les particules fines donnent une phase dense de faible viscosité et le nombre de Reynolds est alors élevé : c'est le domaine des micro-tourbillons. Les particules grossières donnent une viscosité élevée, avec un nombre de Reynolds faible : c'est le domaine des tourbillons toriques. La figure 3 donne des images de bulles, et la figure 4 le volume de leur sillage en fonction de la granulométrie de la poudre fluidisée.

### 3.1.5 Circulation de la phase dense dans le lit

Soit  $\alpha$  le volume de phase dense par unité de volume de bulles, entraîné à la vitesse  $U_A$  des bulles. La phase dense qui monte doit redescendre. Lorsque  $(U - U_o)$  augmente, le débit ascendant augmente (on suppose  $\alpha$  constant), et la section disponible pour la descente diminue. Quelles sont les valeurs limites de ce débit ?

- $q_E = \alpha(U - U_o)$  : débit ascendant et descendant de phase dense ;
- $f_b = (h - h_o)/h$  : fraction volumique du lit occupé par les bulles ;
- $(h/h_o - 1) = (U - U_o)/U_B$  : loi d'expansion ;
- $\alpha f_b$  : fraction volumique occupée par la phase dense qui monte ;
- $1 - f_b(1 + \alpha)$  : fraction volumique occupée par la phase dense qui descend ;
- $U_A = (U - U_o) + U_B$  : vitesse ascendante de la phase dense ;
- $U_S = \alpha(U - U_o) / [1 - f_b(1 + \alpha)]$  : vitesse descendante de la phase dense

Il est intéressant de calculer les valeurs de  $(U - U_o)$  pour atteindre  $f_b = 0,5$ , ainsi que celles pour lesquelles  $U_S$  devient égale à  $(U - U_o)$  ou à  $U_A$ , et quand, par disparition de la surface restée disponible pour la descente de la phase dense,  $U_S$  a tendance à augmenter indéfiniment :

- $f_b = 0,5$  pour  $(U - U_o) = U_B$  ;
- $U_S = (U - U_o)$  pour  $(U - U_o) = U_B(1 - \alpha)/2\alpha$  ;
- $U_S = U_A$  pour  $(U - U_o) = U_B/2\alpha$  ;
- $U_S$  infini pour  $(U - U_o) = U_B/\alpha$ .

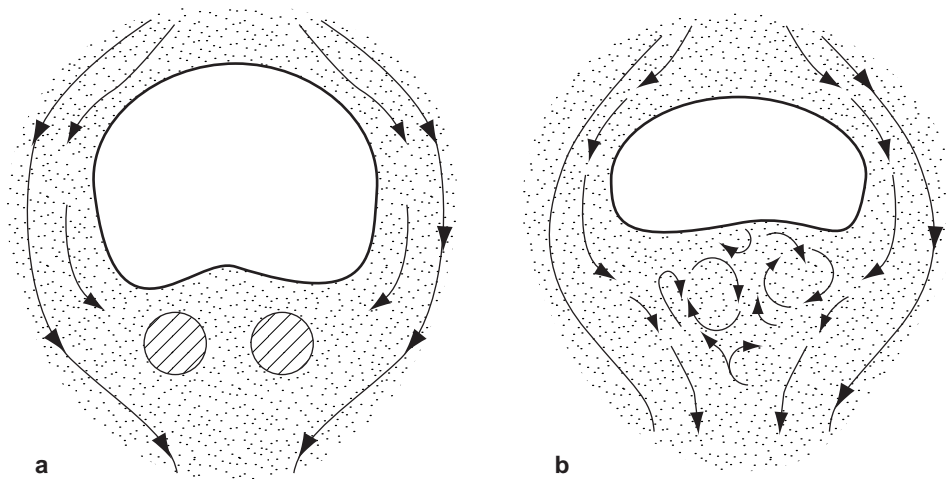


Figure 3

Écoulement de la phase dense dans le sillage d'une bulle en fonction de la taille des particules d'après les expériences de Rowe et Patridge (1962). Les particules de 400 à 500  $\mu\text{m}$  (a) forment un tore défluidisé. Les particules < 100  $\mu\text{m}$  (b) sont agitées par des microtourbillons.

*Dense phase flowing behind a bubble from Rowe and Patridge (1962) experiences. With 400 to 500  $\mu\text{m}$  diameter particles (a), a defluidized ring is observed. With < 100  $\mu\text{m}$  diameter particles (b), agitated and very turbulent eddies take place.*

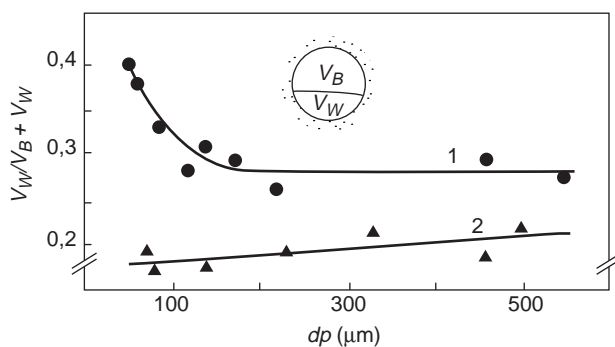


Figure 4

Volume du sillage entraîné par les bulles à leur propre vitesse en fonction de la dimension des particules, selon Rowe in Davidson et Harrison (1971).

La courbe 1 est relative à des billes en verre et la courbe 2 à du sable à particules irrégulières.

*Variations of wake volume of a bubble carried by it at its own velocity against particles diameter, from Rowe in Davidson and Harrison (1971).*

Avec des particules fines pour lits performants dont  $U_{mf} = 0,15 \text{ cm/s}$ ,  $U_B = U_{BX} = 0,8 \text{ m/s}$  et  $\alpha = 0,5$ , on obtient :

- $f_b = 0,5$  pour  $(U - U_o) = 0,8 \text{ m/s}$  ;
- $U_S = (U - U_o)$  pour  $(U - U_o) = 0,4 \text{ m/s}$  ;
- $U_S = U_A$  pour  $(U - U_o) = 0,8 \text{ m/s}$  ;
- $U_S$  infini pour  $(U - U_o) = 1,6 \text{ m/s}$ .

Si l'on compare ces chiffres, et en particulier ceux relatifs à  $f_b = 0,5$  et  $U_S$  infini, à ceux trouvés par Yerushalmi *et al.* (1976) pour la transition entre les lits bouillonnants et turbulents (60 à 90 cm/s) et l'apparition des lits rapides (1,5 à 2 m/s), on constate qu'en tendance générale, ils rendent compte de certaines réalités malgré la simplicité du calcul.

### 3.1.6 Circulation du gaz au voisinage des bulles

Il existe une circulation ascendante au centre de la bulle et descendante le long des parois, induite par la circulation de la phase dense. Ceci est analogue à ce qui existe en gaz/liquide. Une autre circulation se superpose à celle-ci. Elle est induite par la différence de pression statique dans la phase dense entre le haut et le bas de la bulle. Elle pénètre au bas de la bulle et ressort en haut, et assure la stabilité des parois de la bulle en maintenant les particules en suspension. La pression dans la bulle est de ce fait égale à celle de la phase dense au niveau du périmètre de la bulle, où les plans tangents sont verticaux. On peut penser qu'il n'y a pas égalité des débits pénétrant et sortant de la bulle lorsque celle-ci n'a pas son diamètre de stabilité.

Davidson et Harrison (1963) ont calculé cette deuxième circulation avec un modèle à potentiel de vitesse. Dans ce modèle, la bulle a la forme d'une sphère de diamètre  $D_B$  et le gaz traverse les parois à une vitesse égale à  $U_o$  (soit  $U_{mf}$  pour les auteurs). Le débit total est de  $(3/4)\pi U_o (D_B)^2$ . À l'extérieur de la bulle, la circulation est alors, pour  $U_B > U_o$ , confinée

entre la bulle de diamètre  $D_B$  et une sphère concentrique de diamètre  $D_C$ . Pour les particules fines, la relation proposée se simplifie :

$$D_C/D_B = 1 + U_o/\varepsilon_o U_B \quad (5)$$

La zone située entre les deux sphères concentriques a été appelée *nuage*.

Pour préciser cette notion de nuage, Rowe (1964) a injecté une bulle de gaz coloré dans un lit fluidisé à  $U_{mf}$  de billes en verre de 250  $\mu\text{m}$ . Le gaz coloré pénètre en priorité dans une zone périphérique située entre la sphère qui contient la bulle et le sillage, et une sphère plus grande, tangente à la première à son point le plus bas. Jackson (1963) et Murray (1965) ont formulé des modèles permettant de retrouver cette forme, peu différente de celle définie par les deux sphères concentriques.

### 3.2 Transfert entre bulles libres et phase dense

Pour les lits à particules fines (seul domaine considéré ici), le transfert dû à la circulation du gaz entre la bulle et la phase dense est faible par rapport à celui apporté par la diffusion (établi en 1963 par Davidson et Harrison). Il sera donc négligé.

Selon Drinkenburg et Rietema (1972), les résistances au transfert considérées comme possibles dans les modèles proposés sont :

- $R_0$  : entre la bulle et son interface avec le nuage ;
- $R_1$  : entre cette interface et le nuage lui-même ;
- $R_2$  : du nuage lui-même (son épaisseur) ;
- $R_3$  : entre le nuage et la phase dense.

Davidson et Harrison (1963) ciblent la résistance sur  $R_0$ , Patridge et Rowe (1966) sur  $R_3$ , Kunii et Levenspiel (1968) sur  $R_0$  et  $R_3$ , Toei et Matsuno (1969) sur  $R_3$ , Chiba et Kobashi (1970) sur  $R_1$ .

On peut déduire de l'étude faite par Drinkenburg et Rietema (1972) que le coefficient de transfert  $k_G$  par unité de surface de bulles est représentable pour tous les modèles proposés par la relation :

$$k_G = C(gD_G/U_B)^{0,5} \quad (6)$$

soit, avec  $U_B = 0,71(gD_B)^{0,5}$  :

$$k_G = a(gD_G^2/D_B)^{0,25} \quad (7)$$

où  $a$  est une constante fonction des résistances prises en compte et du modèle considéré.

Patridge et Rowe (1966) situent la résistance entre le nuage et la phase dense. Ils utilisent pour l'évaluer l'équation de transfert à couche limite d'une sphère dans un liquide :

$$\text{Sh} = 0,7 \text{Sc}^{1/3} \text{Re}^{1/2} \quad (8)$$

où  $\text{Sh}$ ,  $\text{Sc}$ ,  $\text{Re}$  sont les nombres de Sherwood, Schmidt et Reynolds ( $\text{Sh} = k_G D_B / D_G$ ,  $\text{Sc} = \mu_g / \rho_g D_G$ ,  $\text{Re} = \rho_g U_B D_B / \mu_g$ ). Posant  $\text{Sc} = 1$  (soit  $D_G = \mu_g / \rho_g$  et  $a = 0,59$ ) et admettant que seule la surface libre laissée par les particules participe au transfert, avec  $\varepsilon_o = 0,5$ , on obtient  $a \cong 0,30$ .

Les mécanismes utilisés par les autres modèles relèvent de la théorie de pénétration de Higbie (1935) établie pour les systèmes gaz/liquide. L'équation de base de cette théorie est :

$$k_G = (4D_G/\pi t)^{1/2} \quad (9)$$

où  $t$  est le temps pendant lequel le liquide reste en contact avec l'interface de la bulle en s'écoulant du sommet au bas de la bulle. Pour Higbie,  $t = D_B/U_B$  avec  $D_B$  égal au diamètre de la sphère de même volume que la bulle et  $U_B$  sa vitesse par rapport au liquide. On trouve alors :

$$k_G = (2U_B/\pi^{1/2})(D_G/U_B D_B)^{1/2} \quad (10)$$

Dans les lits fluidisés à bulles libres,  $U_B = 0,71(gD_B)^{1/2}$  (régime de Taylor), d'où :

$$k_G = a(gD_G^2/D_B)^{0,25} \quad (11)$$

avec

$$a = 2(0,71/\pi)^{1/2} = 0,951$$

Cette relation (11), établie avec l'équation de base de Higbie, est identique à la relation (7) déduite de l'étude comparative des modèles effectuée par Drinkenburg et Rietema (1972).

Examinons pour quelques modèles la valeur de la constante  $a$  :

- en appliquant la théorie de Higbie sans aucune hypothèse :  $a = 0,951$  ;
- d'après Rowe, on aurait :  $a = 0,59$  ;
- Davidson et Harrison ( $R_1 = R_2 = R_3 = 0$ ) proposent  $a = 0,975$  ;
- Kunii et Levenspiel ajoutent à la résistance  $R_0$ , pour laquelle ils adoptent la valeur proposée par Davidson et Harrison, la résistance  $R_3$ . Les éléments de calcul pour cette deuxième résistance ont été extraits de leur livre (1993, p. 251). On a trouvé :  $a = 0,672$ . D'où pour les deux en série :  $a = 0,40$ .

Connaissant  $k_G$ , on calcule  $H_{OK}$ , hauteur de l'unité de transfert.

La définition de  $H_{OK}$  donne :

$$k_G \pi D_B^2 (H_{OK}/U_B) = \pi D_B^3 / 6$$

$$\text{d'où } H_{OK} = (0,71/6a)g^{0,25} D_G^{-0,5} D_B^{1,75} \quad (12)$$

Pour  $a = 0,95$  (Higbie),  $D_G = 0,7 \times 10^{-4}$  (hélium et air), on obtient :

$$H_{OK} = 28 D_B^{1,75} \quad (13)$$

### 3.3 Transfert entre bulles pistonantes et phase dense

#### 3.3.1 Que propose la théorie de la pénétration de Higbie ?

Aux débits de gaz modérés, il est raisonnable de penser qu'il existe un domaine où les bulles atteignent le diamètre du tube et la vitesse de bulles pistonantes, sans s'être trop éloignées de la forme sphérique. Dans ces conditions, les relations relatives aux lits pistonnants se déduisent de celles relatives aux lits à bulles libres, en posant  $D_B = D_T$  et  $U_B = U_{BT} = 0,35(gD_T)^{1/2}$ , d'où d'après les équations (12) et (13) :

$$k_G = a_p \cdot (gD_G^2/D_T)^{1/4} \quad (14)$$

$$a_p = a(0,35/0,71)^{1/2} = 0,70a$$

L'équation (13) relative aux lits à bulles libres devient :

$$H_{OK} = 40(D_T)^{1,75} \quad (15)$$

Aux débits de gaz élevés, les bulles ont des formes allongées de hauteur  $h_B$ . Elles sont séparées par une hauteur  $h_S$  de phase dense. Schématisons les bulles par des cylindres de hauteur  $H_B$  et de diamètre  $D_T$ , séparés par des hauteurs de phase dense  $H_S$ . On doit donc avoir :  $H_B + H_S = h_B + h_S$ .

Si nous ne prenons en compte que la surface latérale des cylindres, la théorie de la pénétration donne :

- le temps de pénétration de Higbie :  
 $t = H_B/U_{BT}$  avec  $U_{BT} = 0,35(gD_T)^{1/2}$  ;
- le coefficient de transfert :  $k_G = (2/\pi^{1/2})(D_G U_{BT}/H_B)^{1/2}$  ;
- la hauteur d'unité de transfert :

$$H_{OK} = (D_T/4)(U_{BT}/k_G) \\ = [(0,35\pi)^{1/2}/8]g^{0,25}D_G^{-0,5}H_B^{0,5}D_T^{1,75}.$$

L'expérience montre que l'expansion se fait par l'allongement des bulles. Ceci permet d'écrire :  $H_S = bD_T$  avec  $b$  constant pour une poudre donnée ( $b \cong 4$ ), d'où  $(h - h_o)/h_o = H_B/bD_T = (U - U_o)/U_{BT}$ .

Pour comparer deux lits pistonnants de diamètre différent, il est logique de le faire à forme de bulle constante, donc à  $(U - U_o)/U_{BT} = V_N$  constant ( $V_N$  est normée par rapport à  $U_{BT}$ ).

D'où  $H_B = bV_N D_T$ , et l'équation (15) devient :

$$H_{OK} = 30(bV_N)^{0,5}D_T^{1,75} \quad (16)$$

Lorsque l'on fait, dans un appareil donné, varier la vitesse des gaz,  $b$  reste constant pour une poudre donnée.  $V_N$  varie comme  $(U - U_o)$ .

Hovmand et Davidson ont fait une étude très détaillée pour, tout en utilisant le même formalisme que dans le cas des bulles libres, tenir compte de la forme des bulles. Ils ont introduit deux paramètres géométriques  $I$  et  $m$ . Ces deux paramètres sont fonction du rapport de la hauteur des bulles au diamètre du tube ( $h_B/D_T$ ), de leur forme et de la vitesse des gaz. Cette étude est résumée dans le chapitre 5 du traité de

Davidson et Harrison (1971). Des résultats présentés, on peut déduire pour  $D_G = 0,7 \times 10^{-4}$  (He et air) :

$$H_{OK} = 9D_T^{1,75}(m/I) \quad (17)$$

D'après ces mêmes données, on a calculé que  $(m/I)$  varie de 1,4 à 2,5 lorsque  $(U - U_o)/U_{BT}$  varie de 0,35 à 1,1 (seul domaine intéressant en pratique).

#### 3.3.2 Que peut-on conclure sur l'application de la théorie de Higbie aux lits pistonnants ?

L'expérience donne, pour  $U_{mf} < 1,5$  cm/s et  $(U - U_o) > 0,12(gD_T)^{1/2}$  :  $H_{OK} = 4,35D_T$ . Aucune des équations (15), (16) ou (17) issues du mécanisme de pénétration de Higbie ne représente la réalité.

#### 3.3.3 Que propose la théorie de la couche limite ?

Compte tenu de la géométrie tubulaire des bulles aux débits élevés, un modèle de type « film tombant » est possible. Le film tombant est formé de phase dense. On suppose que son diamètre est très voisin de  $D_T$  et que sa vitesse relative par rapport aux bulles tubulaires est  $U_{BX}$ . Dans ce cas, les transferts entre le gaz des bulles et le film tombant sont donnés par la corrélation de Colburn (1930). Limitée au transfert de masse, cette dernière s'écrit :

$$(k_G/U_{BX}) Sc^{2/3} = f/2 \quad (18)$$

avec  $Sc = (\mu_g/\rho_g D_G)$ .

Aux nombres de Reynolds élevés :  $f/2 = 0,023 Re$  pour les tubes lisses, et  $f/2 = F(\varepsilon/D_T)$  pour les tubes de rugosité  $\varepsilon/D_T$ .

En assimilant les bulles pistonnantes à des éléments cylindriques avec extrémités planes et de hauteur  $H_B$ , et en négligeant les surfaces frontales par rapport aux latérales, on a, par définition de  $H_{OK}$  :

$$k_G \pi D_T H_B (H_{OK}/U_{BX}) = (\pi/4) D_T^2 H_B$$

$$\text{soit} \quad H_{OK}/D_T = U_{BX}/4k_G = (Sc^{2/3})/2f \quad (19)$$

Le film tombant de particules, base de ce modèle, offre une paroi rugueuse à l'écoulement des bulles pistonnantes cylindriques. De ce fait,  $H_{OK}/D_T$  est selon cette relation pratiquement indépendant de  $D_T$  et de  $(U - U_o)$ . Confronté aux données expérimentales ( $H_{OK} = 4,35D_T$ ), ceci est très satisfaisant. Ce modèle a été suggéré par Botton *et al.* (1983).

### 3.4 Mélange du gaz de la phase dense dans les lits à bulles libres

Le modèle phénoménologique caractérise le mélange du gaz de la phase dense par un coefficient de dispersion axiale  $E_o$  par unité de section du gaz de la phase dense, tel que  $f_d E_o/h_o$

représente le débit par unité de section de lit du gaz de la phase dense recyclée de haut en bas du lit.

$N_{OE} = (U - U_o)h_o/f_d E_o$  est le nombre d'unités de diffusion et  $H_{OE} = h_o/N_{OE}$  la hauteur de l'unité de diffusion.

Ce mélange n'est jamais pris en compte par les modèles mécanistiques dans l'évaluation des transformations chimiques complexes. Mais il peut être évalué si l'on prend en compte les expériences de Rowe (1965), qui donnent les débits de phase dense entraînés par les bulles. Ces expériences ont permis à Kunii et Levenspiel (1968) de s'intéresser au mélange du solide.

La vitesse de déplacement de la phase dense est beaucoup plus rapide que celle du gaz qu'elle contient par rapport aux particules. De ce fait, la connaissance du coefficient de dispersion de la phase dense  $D_{DO}$  par unités de section de lit et de hauteur de phase dense permet de calculer le coefficient de dispersion du gaz par unité de section de gaz de phase dense  $E_o$ , et celui du solide par unité de section du solide  $E_{so}$ , et, par déduction,  $H_{OE}$  :

$$\begin{aligned} (1 - \varepsilon_o)D_{DO} &= f_m E_{so} \\ \varepsilon_o D_{DO} &= f_d E_o \\ H_{OE} &= f_d E_o / (U - U_o) = \varepsilon_o D_{DO} / (U - U_o) \end{aligned} \quad (20)$$

L'évaluation ci-dessous ne s'applique qu'aux lits où les bulles sont libres, de même taille et bien réparties sur toute la section, ce qui, pour la phase dense, exclut les circulations en *gulf stream*.

Par définition,  $D_{DO} = q_o \cdot l_o$ , où  $q_o$  est le débit axial par unité de section de lit, et  $l_o$  la longueur mesurée en hauteur de phase dense nécessaire pour que les agrégats de phase dense entraînés par les bulles perdent leur individualité par mélange avec la phase dense traversée.

*Calcul de  $q_o$*

Si  $\alpha$  est le volume de phase dense entraîné par unité de volume de bulles, on a :

$$q_o = \alpha f_b U_A = \alpha (U - U_o) \quad (21)$$

*Calcul de  $l_o$*

On admet que les agrégats, représentés en majeure partie par les sillages des bulles, se mélangent à la phase dense, qui défile à la vitesse  $U_B$  par la section équatoriale des nuages. Ces nuages sont délimités par les cercles de diamètres  $D_c$  et  $D_B$ . Entre  $D_c$  et  $D_B$ , nous avons la relation (5) :  $D_c/D_B = 1 + U_o/\varepsilon_o U_B$ . Il en résulte que le débit de phase dense  $Q_M$  qui se mélange au sillage d'une bulle est :  $Q_M \cong (\pi/2)D_B U_o/\varepsilon_o$ .

Supposons que le sillage ait perdu son identité après avoir été renouvelé  $n$  fois. Pendant ce temps, la bulle a parcouru une distance  $l_o$  mesurée en hauteur de phase dense, ce qui permet d'écrire :

$$(l_o/U_B)Q_M = n\alpha(\pi D_B^3/6)$$

$$\text{soit} \quad l_o = (n/3)\alpha D_B U_B \varepsilon_o / U_o \quad (22)$$

*Calcul de  $D_{DO}$  avec les équations (21) et (22)*

$$\begin{aligned} D_{DO} &= q_o l_o = \alpha (U - U_o) (n/3) \alpha D_B U_B \varepsilon_o / U_o \\ &= \varepsilon_o \alpha^2 (n/3) D_B U_B (U - U_o) / U_o \end{aligned} \quad (23)$$

*Calcul de  $H_{OE}$  avec les équations (20) et (23)*

$$\begin{aligned} H_{OE} &= (\varepsilon_o D_{DO}) / (U - U_o) \\ &= (n/3) \varepsilon_o^2 \alpha^2 D_B U_B / U_o \\ &= (0,71n/3) \varepsilon_o^2 \alpha^2 g^{0,5} D_B^{1,5} U_o^{-1} \end{aligned} \quad (24)$$

Pour  $\varepsilon_o = 0,5$ ,  $\alpha = 0,5$ , on obtient :

$$H_{OE} = 0,046n D_B^{1,5} U_o^{-1} \quad (25)$$

*Calcul de  $H_{OK}/H_{OE} = N_{OE}/N_{OK}$*

*avec les équations (13) et (25)*

$$\begin{aligned} H_{OK}/H_{OE} &= N_{OE}/N_{OK} \\ &= (3/6na)(U_o/\varepsilon_o^2 \alpha^2) g^{-0,25} D_G^{-0,5} D_B^{0,25} \end{aligned} \quad (26)$$

*Application*

Pour : a = 0,95 (Higbie) ;

$$D_G = 0,7 \times 10^{-4} \text{ (He et air) ;}$$

$$\varepsilon_o = 0,5 ;$$

$$\alpha = 0,5 ;$$

$$D_B = 0,1 \text{ m ;}$$

$$n = 1 ;$$

$$U_o = 0,002 \text{ m/s,}$$

l'équation (13) donne  $H_{OK} = 0,50$  m, l'équation (25)  $H_{OE} = 0,73$  m et l'équation (26)  $H_{OK}/H_{OE} = 0,68$ .

Si l'on considère  $V_b$  au lieu de  $U_o$  (à  $U_o = 0,002$  m/s correspond  $V_b = 0,005$  m/s), ce qui est plus probable au voisinage de l'interface, on obtient :  $H_{OE} = 0,3$  m et  $H_{OK}/H_{OE} = 1,7$ .

#### 4 COMPARAISON DES MODÈLES MÉCANISTIQUES AU MODÈLE PHÉNOMÉNOLOGIQUE À $U_{mf}$

Ce sont des modèles à un paramètre : le diamètre de comportement des bulles  $D_{BM}$  pour les modèles mécanistiques et la vitesse minimale de fluidisation de comportement  $U_{mf}$  pour le modèle phénoménologique à  $U_{mf}$

Nous établirons une relation entre  $U_{mf}$  et  $D_{BM}$ , puis l'utiliserons pour confronter les modèles mécanistiques aux données expérimentales du modèle phénoménologique à  $U_{mf}$

##### 4.1 Relation entre les paramètres $D_{BM}$ et $U_{mf}$

L'expansion des lits est donnée pour tous les modèles par la relation :

$$h/h_o - 1 = (U - U_o)/U_{BX}$$

avec, pour les lits à bulles libres (tableau 1) :

–  $U_{BX} = 0,88(U_{mf}/0,2)$   
pour le modèle phénoménologique à  $U_{mf}$  ( $U_{mf} < 1,5$  cm/s) ;

–  $U_{BX} = 0,71(gD_{BM})^{1/2}$   
pour les modèles mécanistiques (régime de Taylor).

D'où, avec  $D_{BM}$  en m et  $U_{mf}$  en cm/s :

$$D_{BM} = 0,157(U_{mf}/0,2)^{0,72} \quad (27)$$

Cette relation permet d'exprimer toutes les données expérimentales du modèle phénoménologique reliées à  $U_{mf}$  en fonction de  $D_{BM}$ , et donc de confronter les modèles mécanistiques aux données expérimentales.

Le tableau 2 donne quelques valeurs de  $D_{BM}$  (rappelons que le domaine des lits catalytiques performants est limité par :  $0,08 < U_{mf} < 0,22$  cm/s).

TABLEAU 2

$U_{mf}$ (en cm/s)	0,08	0,1	0,2	0,4
$D_{BM}$ (en cm)	8	9,5	15,7	26

Ces valeurs sont plus élevées que celles que l'on a tendance à retenir sur les bases d'une observation visuelle pour les catalyseurs à particules fines des lits fluidisés catalytiques à hautes performances.

Les mesures d'expansion, de fréquence, de vitesse et de hauteur d'unité de transfert faites dans le cadre de l'élaboration du modèle phénoménologique sur des lits à bulles libres et pistonnants ont montré que certaines propriétés (coefficient d'expansion, vitesse, hauteur d'unité de transfert) étaient stabilisées avant que ne le soit la fréquence, comme si les bulles s'associaient très tôt pour anticiper les propriétés d'un état hydrodynamique d'équilibre final entre les phénomènes de coalescence et de fragmentation.

Ces constats permettent de penser que, même lorsque l'état d'équilibre hydrodynamique est atteint, ce ne sont pas les bulles isolées (celles que l'on voit) qu'il faut considérer pour décrire les propriétés d'un lit, mais des ensembles de bulles, chaque ensemble regroupant, par exemple, les bulles-susceptibles de se rencontrer.  $D_{BM}$  serait donc une dimension fictive. Nous reviendrons plus loin sur ce fait, au cours de l'étude du diamètre maximale des bulles.

## 4.2 Débit de gaz à travers la phase dense

Le modèle mécanistique admet que le débit de gaz à travers la phase dense est égale à  $U_{mf}$ . Le modèle phénoménologique trouve  $U_o > U_{mf}$  pour  $U_{mf} < 1,5$  cm/s. La courbe expérimentale (tableau 1) a tendance à donner  $U_o < U_{mf}$  pour  $U_{mf} > 1,5$  cm/s (bien que l'on ait retenu  $U_o = U_{mf}$ ). Cette tendance traduit bien le phénomène de défluidisation décrit par Rowe pour les particules grossières. Lorsque la phase dense

défile au-dessous du cercle équatorial des bulles, la phase dense doit fournir du gaz à la bulle. Ne disposant pas, comme dans le cas des particules fines, d'un excès de débit par rapport à  $U_{mf}$ , cette fourniture de gaz ne peut se faire que par défluidisation. La remise en fluidisation peut s'effectuer lors du défilement au-dessus du cercle équatorial de la bulle, zone où la bulle fournit du gaz à la phase dense ou au voisinage du distributeur. Mais il faut noter qu'avec des particules grossières, les bulles sont toujours évolutives. De ce fait, leur tendance sera (pour grossir) de fournir à la phase dense moins de gaz qu'elle n'en prend. Le lit devient, pour  $U_{mf} > 1,5$  cm/s, un système à trois phases (phase bulle, phase dense fluide et poudre défluidisée). Une partie de la poudre étant défluidisée, le débit qui traverse le lit est inférieur à  $U_{mf}$ . Un ordre de grandeur peut être évalué en extrapolant la relation qui donne  $U_o$  (tableau 1). Pour  $U_{mf} = 3$  cm/s, on obtient  $U_o = 2,3$  cm/s.

## 4.3 Diamètre maximum des bulles dans les lits à bulles libres

Le modèle mécanistique admet que les bulles ont leur diamètre maximum lorsque leur vitesse  $U_B$  égale la vitesse  $U_t$  de chute libre des particules. Les valeurs réelles sont très supérieures à celles prévues pour les particules fines. L'une des raisons en est que, par effet des forces de cohésion diverses entre les particules, celles-ci ne se comportent plus comme des particules isolées.

La figure 2 ( $U_{mf}$  fonction de  $dp$ ) montre que les forces de cohésion ont un effet sensible en retardant la mise en fluidisation et ce dès que le diamètre des particules devient inférieur à 50  $\mu\text{m}$ . Il existe pour les particules fines, en l'absence de forces de cohésion, un rapport constant entre la vitesse de chute libre et la vitesse minimum de fluidisation (91,6 selon Kunii et Levenspiel, 1993). Ceci permet de dire que la figure 2 rend compte du fait que le diamètre maximal des bulles diminue moins que ne le prévoit la théorie pour  $dp < 50$   $\mu\text{m}$ . L'effet peut être très important pour  $dp < 20$   $\mu\text{m}$ . Miyauchi *et al.* (1981, p. 359, fig. 51) ont rassemblé quelques données. Un extrait en est donné à la figure 5.

Le modèle phénoménologique peut proposer l'équation (27) entre  $D_{BM}$  et  $U_{mf}$ . La seule hypothèse introduite par les modèles mécanistiques est que la vitesse de déplacement des bulles obéit encore au régime de Taylor lorsqu'elles ne sont plus isolées. Si ce n'est pas le cas, l'exposant de  $U_{mf}$  doit être différent. La réponse demande un test de cohérence mettant à contribution d'autres données expérimentales. Le nombre de Reynolds le permet.

Il n'y a pas de tension de surface entre les bulles et la phase dense. En conséquence,  $D_{BM}$  n'est fonction que de la viscosité de la phase dense, et le calcul du nombre de Reynolds doit conduire à une valeur constante indépendante du paramètre  $U_{mf}$  du modèle.

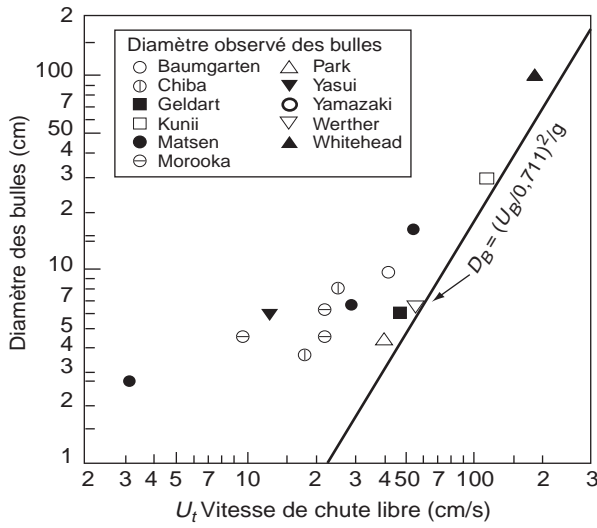


Figure 5

Diamètre des bulles observées en fonction de la vitesse de chute libre  $U_t$  des particules supposées isolées ou, par déduction, de la vitesse minimale de fluidisation  $U_{mf}$  hors effet des forces d'adhésion entre particules ( $U_t/U_{mf} = 91,6$ ). Cette figure est extraite (reproduction partielle) de Myauchi et al. (1981).

Variations of bubble diameters observed against the terminal velocity particles  $U_t$  if they are isolated (or  $U_{mf}$  since, when there is no adhesion effect,  $U_t/U_{mf} = 91,6$ ). This figure is deduced from Myauchi et al. (1981).

L'on a :

- nombre de Reynolds :  $Re = (\rho_d U_{BM} D_{BM}) / \mu_d$  ;
- hypothèse du régime de Taylor :  $U_{BM} = 0,71(g D_{BM})^{1/2}$  ;
- équation (27) :  $D_{BM} = 0,157(U_{mf}/0,2)^{0,72}$  ;
- viscosité de la phase dense :  $10^4 \mu_d = 0,5(U_{mf}/0,2)$  ;

D'où :

$$\rho_d h_o = (1 - \epsilon_{mf}) \rho_p h_{mf}$$

$$\text{et } Re = 2765(1 - \epsilon_{mf}) (h_{mf}/h_o) (0,2/U_{mf})^{0,08} \quad (28)$$

Avec  $(1 - \epsilon_{mf}) \cong 0,5$ ,  $(h_{mf}/h_o)(0,2/U_{mf})^{0,08}$  varie de 0,96 à 0,94 lorsque  $U_{mf}$  varie de 0,08 à 0,22 cm/s, et de 0,96 à 0,85 lorsque  $U_{mf}$  varie de 0,08 à 1,5 cm/s. Rappelons que pour  $U_{mf} > 1,5$  cm/s, le lit est un système à trois phases et qu'alors, toutes les lois changent.

En conclusion, le nombre de Reynolds est bien constant.  $D_{BM}$  donné par l'équation (27) est une dimension géométrique qui caractérise les cavités du lit. Nous retiendrons comme valeur :

$$Re = 1300$$

#### 4.4 Lits à bulles libres - Hauteur d'unité de transfert

Pour comparer les modèles, exprimons  $H_{OK}$  en fonction de  $D_{BM}$  en utilisant l'équation (27).

Le modèle phénoménologique donne pour  $(U - U_o) > 0,1$  m/s, en utilisant l'équation de transfert du tableau 1 :

$$H_{OK} = 22,4 D_{BM}^{1,75} \quad (29)$$

Les modèles mécanistiques sont représentés par l'équation (12) ou (13) que l'on peut écrire :

$$H_{OK} = 25,7(0,975/a)(D_{GHe}/D_G)^{0,5} D_{BM}^{1,75} \quad (30)$$

Dans cette relation,  $D_{GHe}$  est le coefficient de diffusion moléculaire de l'hélium dans l'air, et a, une constante relative au modèle choisi définie par l'équation (7).

Les modèles mécanistiques affichent une variation de  $H_{OK}$  avec le coefficient de diffusion moléculaire de l'espèce transférée. Le modèle phénoménologique en montre l'indépendance. Le transfert s'effectue selon un mécanisme de diffusion turbulente et non de diffusion moléculaire.

Plaçons-nous dans le domaine des lits catalytiques à haute performance ( $0,08 < U_{mf} < 0,22$  cm/s) en prenant  $U_{mf} = 0,1$  cm/s, l'équation (27) donne  $D_{BM} = 0,1$  m. On obtient alors pour :

- le modèle phénoménologique, avec l'équation (29) :  $H_{OK} = 0,40$  m ;
- les modèles mécanistiques avec l'équation (30) : de Davidson et Harrison ( $a = 0,975$ ) :  $H_{OK} = 0,46(D_{GHe}/D_G)$  ; de Kunii et Levenspiel ( $a = 0,40$ ) :  $H_{OK} = 1,18(D_{GHe}/D_G)$ .

Le résultat expérimental obtenu avec de l'hélium sur une poudre caractérisée par  $U_{mf} = 0,1$  cm/s ou  $D_{BM} = 0,1$  m est donné par l'équation (29) :  $H_{OK} = 0,40$  m. C'est donc le modèle de Davidson et Harrison qui donne le résultat le plus proche de la réalité. En fait, les choses sont beaucoup plus subtiles. Si l'on observe les bulles, leur diamètre semble inférieur à 0,1 m, et si l'on calcule  $H_{OK}$  avec la valeur retenue (de l'ordre de 5 à 6 cm), c'est celui de Kunii et Levenspiel qui donne le résultat le plus proche de la réalité.

Plusieurs auteurs, dont Davies et Richardson (1966), Rowe et al. (1971), Rietema et Hoebink (1975), Walker (1975), ont effectué, dans le cadre de l'étude des modèles mécanistiques, des mesures de transfert entre bulles et phase dense. En général, le lit était fluidisé à une vitesse voisine de  $U_{mf}$ . Les bulles étaient injectées par un orifice à une fréquence choisie pour éviter les coalescences entre bulles successives. Les mesures de transfert étaient déduites de prélèvements effectués sur les bulles ou la phase dense en fonction de la distance à l'orifice d'injection. Les gaz traceurs utilisés étaient l'hélium, l'anhydride carbonique et l'ozone. Les diamètres des bulles  $D_B$  ont évolué de 3 à 10 cm, et  $U_{mf}$  de 0,14 à 3,8 cm/s.

Seuls les résultats exprimables en hauteur d'unité de transfert  $H_{OK}$  ont été portés en fonction du diamètre des bulles sur la figure 6.  $H_{OK}$  passe par un minimum pour  $D_B = 6$  à 7 cm, augmente lorsque  $U_{mf}$  augmente de 0,14 à 0,85 cm/s pour passer par un maximum et devenir plus faible à  $U_{mf} = 3,8$  cm/s qu'à  $U_{mf} = 0,14$  cm/s. La relation (29) qui représente le modèle à  $U_{mf}$  pour  $(U - U_o) \geq 0,1$  m/s a été reportée sur la même figure.

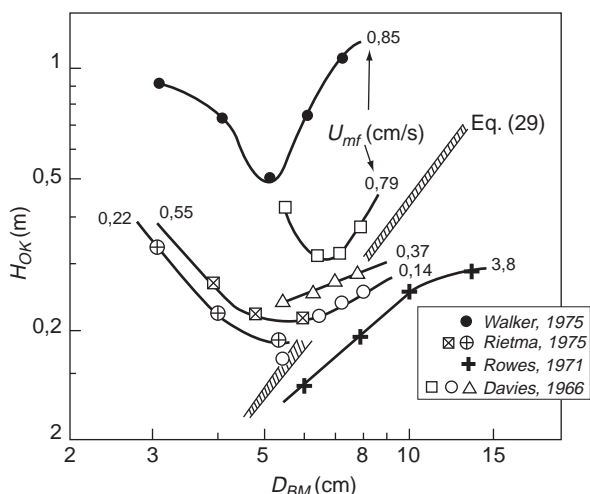


Figure 6  
Hauteurs d'unité de transfert mesurées sur des bulles isolées en fonction de leur diamètre, d'après Davies et Richardson (1966), Rows *et al.* (1971), Rietema et Hoebink (1975) et Walker (1975) et la relation (29) du modèle à  $U_{mf}$  pour les lits à bulles libres:  $H_{OK} = 22,4 D_{BM}^{1,75}$ .

Variations of the height of the unit transfer of an isolated bubble versus its diameter. Experimental works of Davies and Richardson (1966), Rows and al. (1971), Rietema and Hoebink (1975), Walker (1975), and the relation (29) of  $U_{mf}$  model (free bubbling bed:  $H_{OK} = 22,4 D_{BM}^{1,75}$ ).

### 4.5 Lits à bulles pistonnantes - Hauteur d'unité de transfert

L'expérience donne :  $H_{OK} = 4,35D_T$  pour  $(U - U_o) \geq 0,12(gD_T)^{1/2}$ .

Les études sur les modèles mécanistiques présentées ci-dessus ont montré que les modèles basés sur la théorie de la pénétration de Higbie ne représentent pas la réalité. En revanche, celui basé sur les équations de transfert dans un tube semble convenable. Il conduit à l'équation (19), de la forme  $H_{OK} = bD_T$ , avec b constant, si l'on se place en tube rugueux et en transfert à diffusion turbulente prédominant. La nature du film tombant est favorable à cette situation, ce que les résultats des expériences viennent confirmer.

Pour  $(U - U_o) \geq 0,12(gD_T)^{1/2}$ , b est indépendant : de  $(U - U_o)$ , de la poudre si  $U_{mf} < 1,5$  cm/s, et de la nature de l'espèce transférée. Les mêmes valeurs de  $H_{OK}$  ont été obtenues par Botton (1970, 1980) avec de l'hélium, ainsi qu'avec une réaction chimique, pour laquelle les masses moléculaires des réactifs étaient 7 à 9 fois plus élevées que celle de l'hélium.

Pour  $(U - U_o) < 0,12(gD_T)^{1/2}$ , b augmente avec  $(U - U_o)$ , comme si une certaine turbulence du lit était nécessaire pour

stabiliser la valeur de  $H_{OK}$ . Ceci a également été constaté par Botton (1970). C'est un comportement qui rappelle les régimes laminaires et turbulents rencontrés avec un liquide seul ou un gaz.

Guedes de Carvalho et Harrison (1975) ont effectué des mesures de transfert sur une bulle pistonnante injectée, en utilisant de l'argon et de l'hélium. Ils ont interprété leurs résultats avec le modèle de Davidson et Harrison (1971). La différence entre argon et hélium a été effective, mais moindre que ne le laissaient prévoir les coefficients de diffusion. Ceci n'est pas en désaccord avec ce qui est présenté ci-dessus, car dans leurs expériences, la condition  $(U - U_o) \geq 0,12(gD_T)^{1/2}$  n'était pas respectée.

### 4.6 Mélange du gaz de la phase dense des lits à bulles libres

Les modèles mécanistiques sont représentés par l'équation (26) et les données expérimentales par l'équation de dispersion du tableau 1. L'équation (26) rend bien compte de l'effet de  $U_o$  ( $H_{OK}/H_{OE}$  augmente avec  $U_o$ ) mais pas de celui de  $(U - U_o)$ .  $H_{OK}/H_{OE}$  est indépendant de  $(U - U_o)$  selon l'équation (26) et proportionnel à  $(U - U_o)$  d'après l'expérience.

### 4.7 Transformations chimiques

Davidson et Harrison (1963) considèrent que le gaz de la phase dense s'écoule soit selon le mode piston soit selon le mode mélangé. Les résultats sont très différents dans le cas de hauts taux de conversion.

Kunii et Levenspiel (1969) répartissent la phase dense entre les bulles. Ils supposent que la réaction est susceptible d'évoluer à concentration constante dans trois zones :

- dans la bulle avec le peu de catalyseur qu'elle peut contenir ;
- dans le nuage et le sillage ;
- dans la phase dense environnante.

Leur modèle est donné en détail, ainsi que divers exercices d'application, dans leurs ouvrages (1962, 1993).

Werther (1980) a proposé pour les réactions rapides une analogie avec les systèmes gaz/liquide en introduisant un nombre de Hatta adapté.

Nous donnons ci-dessous une écriture de modèle basée sur un coefficient global d'échange entre la bulle et la phase dense. Cette forme très simple est justifiée pour les lits à hautes performances où, pour des raisons de sélectivité, les cinétiques des catalyseurs ne sont pas trop rapides par rapport à celles des transferts.

L'équation de base est :

$$dC_b/dt = K_{be}(C_b - C_e) = k_o \gamma_A C_e \tag{31}$$

$C_b$  et  $C_e$  sont les concentrations dans les bulles et la phase dense ;  $K_{be}$  est le coefficient global de transfert entre bulle et



phase dense par unité de volume de phase bulle ;  $k_o$  est la constante cinétique de la réaction supposée du premier ordre ;  $\gamma_A$  est le volume de phase dense par unité de volume de phase bulle.

Avec :

$$\begin{aligned} dt &= dh_o/U_{BM} \\ \gamma_A &= h_o/(h - h_o) \\ H_{OK} &= U_{BM}/K_{be} \\ H_{OR} &= (U - U_o)/k_o \end{aligned}$$

on obtient :

$$L_N C_o / C_s = L_N [1/(1 - R)] = h_o / (H_{OK} + H_{OR}) \quad (32)$$

Dans cette relation,  $C_o$  et  $C_s$  sont les concentrations dans les bulles à l'entrée et à la sortie du lit.

Cette relation est identique à l'équation de réaction du tableau 1 déduite du modèle de May (1959), lorsque l'on suppose que le mélange du gaz de la phase dense n'a que peu d'effets sur l'avancement de la réaction. Cette hypothèse est justifiée par l'expérience.

## CONCLUSIONS ET SUGGESTIONS

*Dans le domaine des particules très fines :  $U_{mf} < 0,10$  cm/s*

On entre dans le domaine des poudres influuidisables ou, si l'on arrive à maîtriser les forces de cohésion entre les particules, dans celui des lits moussants et des poudres de désaération difficile.

*Dans le domaine des particules fines :  $0,10 < U_{mf} < 1,5$  cm/s*

Le modèle phénoménologique à  $U_{mf}$  est un modèle à un paramètre :  $U_{mf}$ .

Les modèles mécanistiques à bulles sont aussi à un paramètre : le diamètre des bulles ( $D_B$  ou  $D_{BM}$ ).

Les lois d'expansion conduisent à une relation entre  $U_{mf}$  et  $D_{BM}$  utilisée pour confronter les résultats des modèles mécanistiques à l'expérience.

Les modèles mécanistiques suggèrent de très bonnes idées et donnent quelquefois des valeurs très pertinentes. Cependant, il est souhaitable que la formulation de leurs mécanismes de base soit améliorée, au moins en ce qui concerne le domaine des particules fines.

Dans ce domaine, le seul à présenter un intérêt pour les lits catalytiques à hautes performances :

- les transferts sont gérés par diffusion turbulente et non par diffusion moléculaire dans les lits à bulles libres et dans les lits pistonnants ;
- la géométrie à considérer pour les bulles pistonnantes est une géométrie de type tube et non de type sphère pour  $(U - U_o) > 0,12(gD_T)^{1/2}$ . La théorie de Higbie est défailante. Il serait plus simple pour des raisons de cohérence de l'abandonner aussi pour les lits à bulles

libres. On peut s'orienter vers les analogies avec les systèmes gaz/liquide ou, mieux, vers des modèles de type dispersifs comme on le fait pour examiner la dispersion de nappes de gaz dans l'air sous l'effet de la turbulence apportée par le vent.

Les hypothèses retenues par les modèles mécanistiques pour évaluer le mélange de la phase dense ne donnent pas de bons résultats.

La notion de bulle isolée doit être revue. Ce sont des ensembles de bulles anticipant les propriétés d'une bulle unique fictive qu'il faut considérer, ou plus simplement, l'existence d'une grandeur géométrique caractéristique du phénomène bulles, constante dans tout le lit sauf au voisinage immédiat du distributeur.

Il existe beaucoup d'analogies avec les systèmes gaz/liquide dans les domaines où les forces de tension aux interfaces gaz/liquide ont un rôle secondaire.

*Dans le domaine des particules grossières :  $U_{mf} > 1,5$  cm/s*

Un lit fluidisé peut, selon les dimensions de ses particules et celles de l'appareil utilisé, être à bulles évolutives, à bulles pistonnantes ou à bulles libres. Ces trois types de lit sont réalisables avec des particules fines. Avec les particules grossières, seuls les lits à bulles pistonnantes et évolutives sont accessibles. Hors du laboratoire ils sont à bulles évolutives et peu performants pour la phase gaz. Leurs éléments descriptifs (cartographie des bulles...) sont indépendants de la granulométrie. Ces faits incitent à penser que ce domaine est, *a priori*, plus facile à décrire au moyen de modèles mécanistiques ou phénoménologiques que celui des particules fines.

*Pour les lits fluidisés en général*

Malgré les grandes variations possibles du diamètre des appareils, de la granulométrie de la poudre et de la vitesse du gaz, Botton (1980) a été conduit à ne considérer que trois types de lit : les lits à bulles évolutives, les lits pistonnants et les lits à bulles libres.

Geldart (1973) a classé les poudres en quatre groupes (A, B, C, D) en prenant en compte le diamètre moyen  $dp$  des particules et leur densité apparente. Avec des particules de densité apparente égale à un, on a :  $25 < dp < 225$   $\mu$ m pour le groupe A,  $225 < dp < 1100$   $\mu$ m pour le groupe B,  $dp > 1100$   $\mu$ m pour le groupe D, et  $dp < 25$   $\mu$ m pour le groupe C.

Si l'on prend en compte la vitesse minimum de fluidisation de comportement, qui en milieu inerte n'est autre que celle mesurée selon la méthode classique, on peut suggérer que A correspond à  $0,10 < U_{mf} < 1,5$  cm/s, B et D à  $U_{mf} > 1,5$  cm/s et que C commence à  $U_{mf} < 0,10$  cm/s. Le groupe D apparaît lorsque  $U_{mf}$  devient supérieure à la vitesse d'ascension des bulles (par rapport à la phase dense) au voisinage du distributeur. Les bulles s'aplatissent, puis disparaissent lorsque la vitesse des gaz est augmentée.

Pour  $U_{mf} < 1,5$  cm/s, nous avons deux phases bien distinctes : une phase légère (les bulles) qui ne contient que du gaz et une phase dense de suspension de la poudre. Les propriétés du lit ne sont fonction que d'un paramètre : la vitesse minimum de fluidisation de comportement de la poudre.

Pour  $U_{mf} > 1,5$  cm/s (groupe B), nous avons trois phases : les bulles, une phase dense de particules en suspension et une phase dense de particules défluidisées. Les propriétés sont indépendantes de la poudre fluidisée. L'apparition d'une nouvelle phase fait disparaître un paramètre, ce qui est classique.

## REMERCIEMENTS

L'auteur remercie Monsieur Pierre Trambouze pour avoir relu le manuscrit et lui avoir permis, par ses nombreuses suggestions, de beaucoup l'améliorer.

## RÉFÉRENCES

- Botton, R. (1970) Gas Solid Contacting in Fluidized Beds. *AIChE Symp. Series*, **66**, 101, 8-18.
- Botton, R. (1980) Réacteurs à lit fluidisé gaz/solide à haut taux de conversion, miniaturisation de l'échelle pilote. *Contrat DGRST (France) Annexes du rapport*, n° 77, 7-1614 (82 pages).
- Botton, R., Bergougnou, M.A. et Vergnes, F. (1995) High Performance Catalytic Fluidized Bed Reactors. Direct Scale-Up from Laboratory Data (Conversion and Selectivity). Fundamentals about Phenomenological and Bubble Models. *Proc. of 8th Intern. Conf. on Fluid. Engineering Foundation*, Tours, Preprints, **1**, 585-592.
- Botton, R., Laguerie, C. et Vergnes, F. (1985) Lits fluidisés catalytiques à haut taux de conversion - Simulation au laboratoire. *Journées européennes de fluidisation de Toulouse*, 18-20 sept., 424-432.
- Botton, R. et Vergnes, F. (1981) Catalytic Fluidized Reactor Scale-Up. An Approach from Chemical and Specifically Physical Laboratory Data Without the Need of a Pilot Plant Stage. *Chem. Ing. Techn.*, **11**, 481 et *VDI Bericht*, **409**, 567-587.
- Botton, R., Vergnes, F. et Bergougnou, M.A. (1983) Validation by Means of Industrial Data of Kunii-Levenspiel Models which Can be Used in the Scale-Up to Commercial Size of Fluidised Bed Reactors. *Proc. of 4th Inter. Conf. on Fluid. Engineering Foundation*, Kashikojima, 851-858.
- Chiba, T. et Kobayashi, N. (1970) *Chem. Eng. Sci.*, **25**, 1375.
- Colburn, A.P. (1930) Relation between Mass Transfer and Fluid Friction. *Industrial and Engineering Chemistry*, **22**, 9, 967-970.
- Davidson, J.F. et Harrison, D. (1963) *Fluidised Particles*, Cambridge University Press.
- Davidson, J.F. et Harrison, D. (1971) *Fluidization*, Academic Press.
- Davies, L. et Richardson, J.F. (1966) *Trans. Instr. Chem. Eng.*, **44**, T293.
- Davies, R.M. et Taylor, G. (1950) The Mechanics of Large Bubbles Rising through Extended Liquids in Tubes. *Proc. Roy. Soc.*, **A 200**, 375.
- De Vries, R.J., Van Swaaij, W.P.M., Manton, C. et Heijkoop, A. (1972) Design Criteria and Performance of the Commercial Reactor for the Shell Chlorine Process. *Proc. of the 5th European Symp. on Chem. Reaction Engineering*, Amsterdam, **B9**, 59-69.
- Drinkenburg, A.A.H. et Rietema, K. (1972) Gas Transfer from Bubbles in a Fluidized Bed to the Dense Phase-1 Theory. *Chem. Eng. Sci.*, **27**, 1765-1774.
- Geldart, D. (1973) *Powder Technology*, **7**, 285-292.
- Gilliland, E.R. et Mason, E.A. (1949) Gas and Solid Mixing in Fluidized Beds. *Ind. Eng. Chem.*, **41**, 6, 1191-1196.
- Guedes de Carvalho, J.R.F. et Harrison, D. (1975) Mass Transfer from a Slug to a Fluidized Bed. *Proc. of First Intern. Conf. on Fluid. Engineering Foundation*, 245.
- Higbie, R. (1935) *Trans. Am. Instr. Chem. Eng.*, **31**, 365.
- Jackson, R. (1963) *Trans. Instr. Chem. Eng.*, **41**, 22.
- Kunii, D. et Levenspiel, O. (1968) Bubbling Bed Model. *Ind. Eng. Fund.*, **7**, 6, 441-451.
- Kunii, D. et Levenspiel, O. (1969) *Fluidization Engineering*, Wiley.
- Kunii, D. et Levenspiel, O. (1993) *Fluidization Engineering*, Butterworth-Heinemann.
- Matheson, G.L., Herbst, W.A. et Holt, P.H. (1949) Characteristics of Fluid and Solid Systems. *Ind. Eng. Chem.*, **41**, 6, 1089-1100.
- Matsen, J.M. (1970) Expansion of Fluidized Beds in Slug Flow. *AIChE, Symp. Series*, **66**, 101, 47-51.
- Matsen, J.M. (1973) Evidence of Maximum Bubble Size in a Fluidized Bed. *AIChE, Symp. Series*, **69**, 126, 30-33.
- May, W.G. (1959) Fluidized Bed Reactors Studies. *Chem. Eng. Prog.*, **55**, 12, 49-55.
- Miyauchi, T., Furusaki, S., Morooka, S. et Ikeda, Y. (1981) Transport Phenomena and Reaction in Fluidized Catalytic Beds. *Advances in Chemical Engineering*, **11**, Academic Press, New York.
- Murray, J.D. (1965) *J. Fluid. Mech.*, **21**, 465 et 2257.
- Nicklin, D.J. (1962) Two-Phase Bubble Flow. *Chem. Eng. Sci.*, **17**, 693.
- Partridge, B.A. et Rowe, P.N. (1966) *Trans. Instr. Chem. Eng.*, **44**, 335.
- Rietema, K. et Hoebink, J., (1975) Mass Transfer from Single Rising Bubbles to the Dense Phase in Three Dimensional Fluidized Bed. *Fluidization Technologie*, D.L. Keairns (éd.), Mc Graw Hill, **1**, 279.
- Rowe, P.N. (1964) *Chem. Eng. Prog.*, **60**, 75.
- Rowe, P.N. (1965) *Trans. Instr. Chem. Engrs.*, **43**, T157
- Rowe, P.N. (1976) Prediction of Bubble Size in a Gas Fluidised Bed. *Chem. Eng. Sci.*, **31**, 285-288.
- Rowe, P.N., Evans, T.J. et Middleton, J.C. (1971) *Chem. Eng. Sci.*, **26**, 11, 1943.
- Rowe, P.N. et Partridge, B.A. (1962) Proceeding of the Symposium on the Interaction between Fluids and Particles. *Inst. Chem. Eng.*, 135, In Rotenburg, P.A. (Edit.).
- Schugerl, K. (1971) Chap. 6 in *Fluidization*. Academic Press, Londres, 261-292.
- Stewart, et Davidson, J.F. (1967) Slug Flow in Fluidised Beds. *Powder Technology*, **1**, 61-80.
- Toei, R. et Matsuno, R. (1969) *Int. Chem. Eng.*, **9**, 358.
- Van Deemter, J.J. (1961) Mixing and Contacting in Gas-Solid Fluidized Beds. *Chem. Eng. Sci.*, **13**, 143-154.
- Walker, B.V. (1975) *Trans. Instr. Chem. Eng.*, **53**, 255.
- Werther, J. (1974) Bubbles in Gas-Fluidized Beds. *Trans. Instr. Chem. Eng.*, **52**, 149-168.
- Werther, J. (1980) Modeling and Scale-up of Industrial Fluidized Bed Reactors. *Chem. Eng. Sci.*, **35**, 372-379.
- Yerushalmi, J., Turner, D.H. et Squires, A.M. (1976) The Fast Fluidized Bed. *Ind. Eng. Process Des. Dev.*, **15**, 1, 147-152.

## ANNEXE

### Rappels sur le modèle de May (1959)

#### Éléments de base du modèle de May

La majorité du débit total du gaz  $U$  (par unité de section) s'écoule sous forme de bulles selon le mode « piston ». Un très faible débit  $U_o$  transite par une émulsion appelée *phase dense*. Son écoulement est du type mélangé. Son contact avec le catalyseur est supposé parfait. La phase dense contient la totalité du catalyseur.

Trois coefficients ( $K_o$ ,  $E_o$  et  $k_o$ ) sont introduits.

$K_o$  est un coefficient de transfert entre les bulles et le gaz de la phase dense par unité de volume de phase dense (en  $s^{-1}$ ). Si  $h_o$  est le volume de phase dense par unité de section (appelé hauteur),  $K_o \cdot h_o$  est le débit échangé et  $K_o \cdot h_o / (U - U_o)$  est le nombre d'unités de transfert  $N_{OK}$ .

$E_o$  est un coefficient axial de mélange du gaz de la phase dense (en  $m^2 \cdot s^{-1}$ ). Si  $f_d$  est la fraction volumique du lit occupé par ce gaz de la phase dense,  $f_d E_o / h_o$  est le débit recyclé par mélange du haut au bas du lit, et  $h_o (U - U_o) / f_d E_o$  le nombre d'unités de diffusion  $N_{OE}$ .

$k_o$  est la constante cinétique d'une réaction du premier ordre par unité de volume de phase dense (en  $s^{-1}$ ), et  $k_o \cdot h_o / (U - U_o)$  le nombre d'unités de réaction  $N_{OR}$ .

Les hauteurs de phase dense  $H_{OK}$ ,  $H_{OE}$ ,  $H_{OR}$  pour  $N_{OK} = 1$ ,  $N_{OE} = 1$ ,  $N_{OR} = 1$ , sont les hauteurs d'unité de transfert, de diffusion et de réaction.

#### Mesure de $N_{OK}$ : méthode de May adaptée par Botton (1970)

Le gaz traceur est injecté à débit constant et faible dans l'alimentation en gaz du lit jusqu'à stabilisation de sa

concentration  $C_s$  dans les gaz de sortie. Lorsque cette situation est atteinte ( $C_s = C_o$ ), l'injection est coupée et l'évolution de  $C_s$  est examinée. Pour  $C_s/C_o < 0,3$  on trouve que  $L_N(C_o/C_s)$  évolue en fonction du temps  $\theta$  normé par rapport au temps de séjour des gaz dans le lit comme  $-S\theta$ . La constante de temps  $S$  est une fonction de  $N_{OK}$  et de  $N_{OE}$ . Pour obtenir une seconde relation, May utilise un traceur solide. Botton admet que  $N_{OK}$  et  $N_{OE}$  sont proportionnels à la hauteur du lit et effectue les mesures sur deux lits de hauteurs différentes (toute autre condition étant constante).

Les valeurs de  $N_{OK}/N_{OE}$  obtenues montrent, en examinant les courbes calculées  $S = f(N_{OE}, N_{OK}, \phi)$ , que la connaissance de  $S$  permet, dans certaines circonstances, d'accéder directement à  $N_{OK}$  avec une précision raisonnable pour ce type d'expérimentation, et en particulier si  $N_{OK}$  n'est pas trop élevé.

Le détail des appareils, des sondes et des courbes est donné par Botton (1970, 1980).

#### Mesure de $N_{OE}/N_{OK}$ : méthode de Van Deemter (1961)

Le gaz traceur est injecté en continu à mi-hauteur du lit par une source plane (plusieurs injecteurs). Si l'on échantillonne avec la même technique dans des plans situés entre le plan d'injection et le bas du lit, on trouve que la concentration du traceur décroît exponentiellement avec la distance  $z$  au plan d'injection. Van Deemter a calculé que cette évolution était donnée par la relation :

$$n_B/h = d(L_N \cdot C_o/C_s)/dz = (N_{OK}/2)[(1 + 4N_{OE}/N_{OK})^{0,5} - 1]$$

Cette équation donne  $N_{OE}/N_{OK}$  si  $N_{OK}$  est connu.

Les appareils utilisés sont décrits en détail par Botton (1980). Les sondes utilisées ont favorisé injection et échantillonnage dans la phase dense.