

Université
de Liège



Université de Liège

Faculté des Sciences Appliquées

Laboratoire de Génie Chimique

Étude de l'hydrodynamique dans
une colonne de distillation réactive :
Mesure de la distribution des phases par
tomographie à rayons X.

Saïd AFERKA

Thèse réalisée en vue de l'obtention du grade
de docteur en Sciences de l'ingénieur.

2009

Remerciement

Ce travail a été réalisé dans le Laboratoire de Génie chimique de l'Université de Liège, lequel a acquis une grande expérience dans le domaine de l'hydrodynamique des systèmes polyphasiques. Ce travail est réalisé dans le cadre d'une Action de Recherche Concertée intitulée : "Techniques expérimentales avancées et modélisation par Automates cellulaires des systèmes multiphasiques. Application aux colonnes de distillation et de distillation réactive."

Je tiens sincèrement à remercier Madame Dominique Tøye pour la confiance qu'elle m'a accordée, en m'offrant l'opportunité d'effectuer un doctorat au sein de son Service, ainsi que pour les précieux conseils et les encouragements qu'elle m'a prodigués. Je la remercie également pour sa disponibilité et sa compétence, ainsi que pour le temps qu'elle a consacré à la relecture du manuscrit.

Je remercie également le Professeur Michel Crine, responsable du projet de recherche ARC, pour les précieux conseils et les encouragements qu'il m'a prodigués.

Je remercie également le Professeur Pierre Marchot pour l'écriture des fichiers de reconstruction des images sous Matlab, ainsi que pour ses précieux conseils.

Je voudrais également remercier le Professeur Elizabetta Brunazzi de l'université de Pise pour m'avoir permis d'effectuer des mesures dans son laboratoire. Je tiens également à remercier Aurora Viva, pour le soutien et l'aide qu'elle m'a apportés au cours de ce séjour à Pise.

Ce travail n'aurait certainement pu être mené à bien sans les compétences techniques de Monsieur Frédéric Fyon. Qu'il en soit sincèrement remercié. Que tous les autres membres du Service de Génie chimique trouvent ici l'expression de ma sympathie pour l'ambiance de travail amicale qu'ils ont su faire régner tout au long de la réalisation de ce travail.

Je tiens également à remercier ma famille et surtout ma femme pour leurs encouragements.

Mes sincères remerciements vont également à Mesdames et Messieurs les membres du jury, pour le temps qu'ils ont bien voulu consacrer à la lecture et ensuite à l'évaluation de ce travail et particulièrement aux membres extérieurs à l'Université de Liège, qui ont accepté de se déplacer jusqu'à Liège pour assister à la présentation de cette thèse.

Que tous trouvent ici le témoignage de ma profonde reconnaissance.

Table des matières

Table des figures	7
Liste des tableaux	14
Résumé	15
Introduction	17
1 La tomographie à rayons X	22
1.1 Définition	22
1.2 Principe de la tomographie à rayons X	23
1.3 Reconstruction	27
2 Dispositif expérimental	29
2.1 La colonne et les systèmes de circulations des fluides	29
2.2 Les empilages	30
2.2.1 Mellapak Plus 752Y	30
2.2.2 Katapak-SP12	33
2.2.3 Katapak-SP11	35
2.3 Le tomographe à rayons X	36
2.4 Programmation des mesures	39
2.5 Mode opératoire du tomographe	39
3 Analyse des images de sections droites de l'empilage sec	41
3.1 Introduction	41
3.2 Les différentes opérations de traitement d'images	45
3.2.1 Application d'un masque sur toutes les images	46
3.2.2 La normation	47
3.2.3 Le seuillage	48
3.2.4 Binarisation	57
3.3 Fraction de vide des différents empilages	58
3.3.1 Mellapak Plus 752Y	58

3.3.2	Katapak-SP12	61
3.3.3	Katapak-SP11	64
3.4	Surface spécifique des différents empilages	65
3.4.1	Méthodologie	65
3.4.2	Mellapak Plus 752Y	66
3.4.3	Katapak SP12	70
3.4.4	Katapak SP11	73
4	Analyse des images de sections droites de l'empilage irrigué	76
4.1	Introduction	76
4.2	Méthodologie	76
4.3	Les différentes opérations de traitement d'images	76
4.3.1	Soustraction de l'empilage drainé	78
4.3.2	Application d'un masque circulaire	80
4.3.3	Normation	80
4.3.4	Seuillage	81
4.4	Analyse qualitative des images d'empilage irrigué	85
4.5	Analyse quantitative des images d'empilage irrigué	92
4.5.1	Définition de la rétention de liquide	92
4.5.2	Rétention statique de liquide	93
4.5.3	Rétention globale de liquide	96
4.5.3.1	Pour un écoulement de liquide seul.	96
4.5.3.2	Pour un écoulement à contre courant gaz-liquide	98
4.5.3.3	Comparaison avec la littérature	100
4.5.4	Répartition du liquide dans les éléments de Katapak-SP11 et SP12	107
4.5.4.1	Rétention totale de liquide dans les paniers de Katapak	108
4.5.4.2	Rétention totale de liquide dans la zone de distillation du Katapak	109
4.5.5	Mesure du point de charge de liquide dans les paniers de Katapak-SP112	112
4.5.5.1	Katapak-SP11	112
4.5.5.2	Katapak-SP12	114
4.5.5.3	Synthèse	115
4.5.6	Influence de la viscosité du liquide	116
4.5.7	Pertes de charge	118
4.5.8	Aire interfaciale gaz-liquide	120
5	Modélisation	129
5.1	Pertes de charge	129
5.1.1	Modèle de Ratheesh et Kannan	129
5.1.2	Modèle de Behrens	131
5.1.2.1	Les canaux ouverts	131

5.1.2.2	Les canaux fermés	134
5.2	Rétention Statique de liquide	137
5.3	Rétention globale de liquide	139
5.3.1	Modèle de Spiegel	139
5.3.2	Modèle de Ratheesh et Kannan	140
5.3.2.1	Mellapak Plus 752Y	140
5.3.2.2	Katapak-SP11 et Katapak-SP12	141
5.3.3	Modèle de Delft	145
5.3.3.1	Mellapak Plus 752Y	145
5.3.3.2	Katapak-SP11 et Katapak-SP12	147
5.4	Aire interfaciale gaz-liquide	152
5.4.1	Mellapak Plus 752Y	152
5.4.1.1	Modèle de Brunazzi et al[8], (1995)	152
5.4.1.2	Modèle de Olujic et al[21], (1999)	152
5.4.1.3	Modèle de Behrens[3], (2006)	153
5.4.1.4	Modèle de Tsai et al[37], (2009)	154
5.4.1.5	Comparaison des résultats	154
5.4.2	Katapak SP11 et Katapak SP12	155
Conclusion		157
Bibliographie		159
Bibliographie		159

Table des figures

1.1	Principe de la tomographie à rayons X	23
1.2	Projection d'un objet pour un angle ϑ (Kak et Slaney, 1988 [15])	24
1.3	Coefficient d'atténuation des rayons X pour différents matériaux en fonction de l'énergie des rayons X	25
1.4	(a) Projection parallèle, (b) Projection angulaire (Kak et Slaney, 1988 [15])	26
1.5	Rétro-projection. 4 projections d'un objet circulaire sont représentées. La petite cellule située en dehors de l'objet original reçoit une contribution non nulle (Brooks et al., 1976[7]).	27
1.6	Rétro-projection filtrée. Les projections filtrées sont rétro-projetées pour reconstruire l'objet original. Le point situé en dehors de la section circulaire reçoit des contributions positives et négatives qui se compensent (Brooks et Di Chiro, 1976 [7]).	28
2.1	Schéma de l'installation expérimentale	30
2.2	Photographie du Mellapak Plus 752Y	31
2.3	Schéma de la colonne contenant un lit de Mellapak Plus 752Y	32
2.4	Photo d'un empilage aléatoire : le Pall ring	32
2.5	Vue de haut d'un élément de Katapak-SP12	33
2.6	Schéma de la colonne contenant un lit de Katapak-SP12	34
2.8	Schéma de la colonne contenant un lit de Katapak-SP11	35
2.7	Vue du haut d'un élément de Katapak-SP11	36
2.9	Dispositif de tomographie à rayons X. A : bras du tomographe ; S : source de rayons X ; D détecteur ; P : plateau tournant ; R : rails ; W : mur en béton de 0.6 m de largeur	38
2.10	Fenêtre du logiciel Soft-Lyser	40
3.1	Image brute en niveaux de gris d'une section droite d'un empilage de Mellapak Plus 752Y	42
3.2	Image brute en niveaux de gris d'une section droite d'un empilage de Katapak-SP12	43

3.3	Image brute en niveaux de gris d'une section droite d'un empilage de Katapak-SP11	44
3.4	Organigramme reprenant les différentes opérations du traitement d'images	45
3.5	Image d'une section droite d'un Mellapak Plus 752Y sans la paroi de la colonne	46
3.6	Image normée d'une section droite de Mellapak Plus 752Y	47
3.7	Valeurs moyenne du bruit à l'extérieur de la colonne sur 45 sections droites pour différents empilages	48
3.8	Image d'une section droite de Mellapak Plus 752Y après application du seuillage par la méthode d'Otsu	49
3.9	Profil des coefficients d'atténuation d'une ligne d'une image brute (a) et d'une image seuillée par la méthode d'Otsu (b) d'un Mellapak Plus 752Y .	50
3.10	Seuillage progressif d'une image d'une section droite d'un Mellapak Plus 752Y	52
3.11	Image brute d'une section droite de la colonne contenant des éléments de Mellapak Plus 752Y dans laquelle on a enlevé le solide	53
3.12	Image d'une section droite de Mellapak Plus 752Y seuillée par méthode manuelle	54
3.13	Profil des coefficients d'atténuation d'une ligne d'une image brute (a) et d'une image seuillée par la méthode manuelle d'une section droite de Mellapak Plus 752Y	55
3.14	Profil des coefficients d'atténuation d'une ligne d'une section droite du Mellapak Plus 752Y avec les deux seuils obtenus à partir des deux méthodes de seuillage étudiées dans ce travail	56
3.15	Image binarisée d'une section droite de Mellapak Plus 752Y	57
3.16	(a) : Image en niveaux de gris d'une section droite sans utilisation du squelette ; (b) : Image en niveaux de gris d'une section droite avec utilisation du squelette ; (c) : zoom d'une partie de l'image (a) ; (d) : zoom d'une partie de l'image (b)	59
3.17	Fraction de vide pour différentes sections droites du Mellapak Plus 752Y .	60
3.18	a) Masques des paniers du Katapak-SP12 ; b) Image en niveaux de gris des paniers du Katapak-SP12	61
3.19	Fraction de vide pour différentes sections droites du lit de Katapak-SP12 .	62
3.20	Section droite en bas d'un élément de Katapak-SP12 montrant la fermeture des paniers de cet élément	63
3.21	Fraction de vide pour différentes sections droites du lit de Katapak-SP11 .	64
3.22	Image binarisée d'une section droite d'un élément de Mellapak Plus 752Y en l'absence de la paroi de la colonne.	66
3.23	Evolution de l'aire spécifique du Mellapak Plus 752Y en fonction de la hauteur de l'élément d'empilage	67

3.24	Image binarisée d'une section droite du Mellapak Plus 752Y. Visualisation des trous, du wall wiper et de l'espace entre l'empilage et la paroi de la colonne	68
3.25	Image binarisée d'une section droite du Mellapak Plus 752Y. Cercle rouge délimitant la section droite de l'empilage	69
3.26	Image d'une section droite du Katapak SP12. Visualisation de la surface externe des paniers en rouge et de la surface des feuilles ondulées en vert .	71
3.27	Différentes contributions de l'aire spécifique d'un élément de Katapak TM SP12	72
3.28	Valeurs de la surface spécifique du Katapak-SP12 pour différentes sections droites du lit d'empilage	72
3.29	Image d'une section droite du Katapak SP11. Visualisation de la surface externe des paniers en rouge et de la surface des feuilles ondulées en vert .	73
3.30	Valeurs de la surface spécifique pour différentes sections droites d'un élément de Katapak TM SP11	75
3.31	Valeurs de la surface spécifique du Katapak-SP11 pour différentes sections du lit d'empilage	75
4.1	Organigramme reprenant les différentes opérations du traitement d'images d'empilage irrigué	77
4.2	Image d'une section droite de Katapak-SP11 sec	78
4.3	Image d'une section droite de Katapak-SP11 complètement noyé d'eau . .	79
4.4	Image d'une section droite du liquide seul obtenue après avoir soustrait les projections d'empilage sec des projections d'empilage noyé	79
4.5	Image du liquide seul après application d'un masque circulaire	80
4.6	Niveaux du bruit à l'extérieur de la colonne pour différents empilages dans les conditions de colonne sèche et complètement remplie d'eau	81
4.7	Profil d'une ligne de l'image de la Figure 4.5	82
4.8	Application du seuil d'Otsu sur l'image de la Figure 4.5	83
4.9	Application du seuil de la méthode basée sur le niveau du bruit externe sur l'image de la Figure 4.5	83
4.10	Evolution de la distribution de liquide à différentes hauteurs dans le lit et donc à différentes distance du distributeur : (a) 1400 mm ; (b) 1320 mm ; (c) 1240 mm ; (d) 1180 mm ; (e) 1010 mm et (f) 770 mm pour un débit de liquide de 40 l/h ($U_L=4.97$ m/h)	86
4.11	Evolution de la distribution de liquide à différentes hauteurs dans le lit et donc à différentes distance du distributeur : (a) 1400 mm ; (b) 1320 mm ; (c) 1240 mm ; (d) 1180 mm ; (e) 1010 mm et (f) 770 mm pour un débit de liquide de 110 l/h ($U_L=12.7$ m/h)	87

4.12	Evolution de la distribution de liquide à différentes hauteurs dans le lit et donc à différentes distance du distributeur : (a) 1400 mm ; (b) 1320 mm ; (c) 1240 mm ; (d) 1180 mm ; (e) 1010 mm et (f) 770 mm pour un débit de liquide de 200 l/h ($U_L=23.1$ m/h)	88
4.13	Evolution de la distribution de liquide dans le lit de Katapak-SP12 à différentes distance du distributeur : (a) et (e) 1400 mm ; (b) et (d) 1320 mm ; (c) et (f) 1240 mm pour deux débits de liquide : 40 et 200 l/h ($U_L=4.97$ et 23.1 m/h)	89
4.14	Evolution de la distribution de liquide dans le lit de Mellapak Plus 752Y à différentes distance du distributeur : (a) et (e) 1430 mm ; (b) et (d) 1140 mm ; (c) et (f) 970 mm pour deux débits de liquide : 40 et 200 l/h ($U_L=4.97$ et 23.1 m/h)	90
4.15	Rétention statique de liquide dans un lit de Katapak-SP11 rapportée à la section droite de la colonne après 1heure et 24 heures de drainage	93
4.16	Rétention statique de liquide dans un lit de Katapak-SP12 rapportée à la section totale de la colonne après 1heure de drainage	94
4.17	Rétention totale de liquide en fonction de la hauteur du lit de Mellapak Plus 752Y, c'est-à-dire en fonction de la distance par rapport au pied de la colonne.	96
4.18	Rétention totale de liquide en fonction de la hauteur du lit de Katapak-SP11, c'est-à-dire en fonction de la distance par rapport au pied de la colonne.	98
4.19	Rétention totale de liquide en fonction de la hauteur du lit de Katapak-SP12, c'est-à-dire en fonction de la distance par rapport au pied de la colonne.	98
4.20	Rétention totale de liquide pour différents débits de liquide en fonction du facteur F dans un lit de Katapak-SP11	100
4.21	Rétention totale de liquide en fonction du facteur F pour différents débits de liquide dans un lit de Katapak-SP12	100
4.22	Comparaison des valeurs de rétention de liquide obtenues par tomographie à rayons X avec celles déterminées par Viva et Behrens dans un lit de Mellapak Plus 752 Y parcouru par un écoulement de liquide	101
4.23	Comparaison des valeurs de rétention de liquide obtenues par tomographie à rayons X avec celles déterminées par Viva dans un lit de Katapak-SP11 parcouru par un écoulement de liquide	102
4.24	Comparaison des valeurs de rétention de liquide obtenues par tomographie à rayons X avec celles déterminées par Viva dans un lit de Katapak-SP12 parcouru par un écoulement de liquide	103
4.25	Rétention totale de liquide en fonction du Facteur F dans un lit de Katapak-SP11	103

4.26	Rétention totale de liquide en fonction du Facteur F dans un lit de Katapak-SP12	104
4.27	a)Elément de Katapak-SP12 utilisé dans ce travail ; b) Elément de Katapak-SP12 utilisé par Ratheesh et Kannan ainsi que Behrens	105
4.28	Comparaison des valeurs de rétention dynamique de liquide dans un lit de Katapak-SP12 obtenues à partir de la tomographie à rayons X avec ceux déterminées par d'autres auteurs	106
4.29	Fraction de rétention de liquide dans les paniers et zone de distillation du Katapak-SP11	108
4.30	Fraction de rétention de liquide dans les paniers et zone de distillation du Katapak-SP12	108
4.31	Rétention totale de liquide dans les paniers de Katapak-SP11 rapportée à la section totale de la colonne en fonction de la hauteur dans le lit d'empilage	109
4.32	Rétention totale de liquide dans les paniers de Katapak-SP12 rapportée à la section totale de la colonne en fonction de la hauteur dans le lit d'empilage	109
4.33	Rétention totale de liquide dans la zone de distillation de Katapak-SP11 rapportée à la section totale de la colonne	110
4.34	Rétention totale de liquide dans la zone de distillation de Katapak-SP12 rapportée à la section totale de la colonne	111
4.35	Rétention de liquide dans les paniers externes et internes du Katapak-SP11 pour U_L de $4.62 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$	112
4.36	Rétention de liquide dans les paniers externes et internes du Katapak- SP11 pour U_L de $12.7 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$ et U_G de 0 m/s	113
4.37	Images d'une section droite de Katapak-SP11 (K4) parcouru par un débit de liquide de 4.69 m/h situées à une distance de 690 mm (a) et 770 mm (b) du distributeur	113
4.38	Rétention de liquide dans les paniers externes et internes du Katapak- SP11 pour U_L de $12.7 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$ et U_G de 1.22 m/s	114
4.39	Rétention de liquide dans les paniers externes et internes du Katapak-SP12 pour U_L de $4.6 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$	115
4.40	Rétention de liquide dans les paniers externes et internes du Katapak-SP12 pour U_L de $23.1 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$	115
4.41	Rétention de glycérine et rétention d'eau dans un lit de Katapak-SP11 en fonction du débit de liquide	116
4.42	Rétention de glycérine obtenue par tomographie et par pesée dans un lit de Katapak-SP11 en fonction du débit de liquide	117
4.43	Evolution de la perte de charge avec le facteur F dans un lit de Katapak-SP12	118
4.44	Pertes de charge dans un lit de Katapak-SP12 à débit de liquide nul	119
4.45	Pertes de charge pour différents types de lit: Katapak-SP12, Mellapak Plus 752Y et Hybride (Katapak-SP12 + Mellapak Plus 752Y) pour $U_L = 17.30 \text{ m/h}$	119

4.46	Pertes de charge pour différents types de lit: Katapak-SP12, Mellapak Plus 752Y et Hybride (Katapak-SP12 + Mellapak Plus 752Y) pour $U_L = 10$ m/h (Olujic et Behrens)	120
4.47	Image d'une section droite du Mellapak Plus 752Y parcouru par un débit de liquide ($U_L = 23.10$ m/h)	121
4.48	Valeurs d'aire interfaciale Gaz-liquide du Mellapak-Plus 752Y en fonction de la vitesse superficielle du liquide, obtenues à partir de la tomographie à rayons X	121
4.49	Image d'une section droite du Katapak-SP12 irrigué. ($U_L = 31$ m/h ; $F_G = 1.53$ m/s (kg/m^3) ^{0.5})	122
4.50	Image d'une section droite du Katapak-SP12 irrigué dont les paniers sont masqués en gris. ($U_L = 31$ m/h) ; $F_G = 1.53$ m/s (kg/m^3) ^{0.5})	122
4.51	Image d'une section droite du Katapak-SP12 irrigué sans wall wiper. ($U_L = 12$ m/h ; $F_G = 0.61$ m/s (kg/m^3) ^{0.5})	123
4.52	Image d'une section droite du Katapak-SP12 avec wall wiper. ($U_L = 12$ m/h ; $F_G = 0.61$ m/s (kg/m^3) ^{0.5})	124
4.53	Image d'une section droite du Katapak-SP12 sans wall wiper. ($U_L = 12$ m/h ; $F_G = 1.53$ m/s (kg/m^3) ^{0.5})	124
4.54	Image d'une section droite du Katapak-SP12 avec wall wiper. ($U_L = 12$ m/h ; $F_G = 1.53$ m/s (kg/m^3) ^{0.5})	125
4.55	Image d'une section droite du Katapak-SP12 sans wall wiper. ($U_L = 25$ m/h ; $F_G = 1.53$ m/s (kg/m^3) ^{0.5})	125
4.56	Image d'une section droite du Katapak-SP12 avec wall wiper. ($U_L = 25$ m/h ; $F_G = 1.53$ m/s (kg/m^3) ^{0.5})	126
4.57	Aire spécifique et aire interfaciale gaz-liquide pour 19 sections droites du lit de Katapak-SP12 et pour deux débits de liquides : $U_L = 25$ et 31 m/h ($F_G = 1.23$ m/s (kg/m^3) ^{0.5})	127
4.58	Evolution du rapport a_{GL}/a_{SP} en fonction de la vitesse du gaz (Facteur F) pour différentes vitesses superficielle du liquide	128
5.1	Prédiction de la perte de charge par le modèle de Kannan et Ratheesh : empilage Katapak- SP12	130
5.2	Prédiction de la perte de charge par le modèle de Kannan et Ratheesh : empilage Mellapak Plus 752Y	130
5.3	Prédiction de la perte de charge par le modèle de Kannan et Ratheesh : lit hybride (Mellapak Plus 752Y + Katapak- SP12)	131
5.4	Prédiction de la perte de charge par le modèle de Behrens : Katapak-SP12	135
5.5	Prédiction de la perte de charge par le modèle de Behrens : Mellapak Plus 752Y	135
5.6	Prédiction de la perte de charge par le modèle de Behrens : lit hybride (Katapak-SP12 + Mellapak Plus 752Y)	136

5.7	Rétention statique dans les paniers d'un élément de Katapak-SP11	137
5.8	Comparaison des valeurs de rétention de liquide dans un lit de Mellapak Plus 752Y obtenues par la tomographie avec celles déterminées par le modèle proposé par Spiegel.	140
5.9	Comparaison des valeurs de rétention de liquide dans un lit de Mellapak Plus 752Y obtenues par la tomographie avec celles déterminées par le modèle proposé par Ratheesh et Kannan.	141
5.10	Comparaison des valeurs de rétention de liquide dans un lit de Katapak-SP11 obtenues à partir de la tomographie avec celles évaluées à partir du modèle de Ratheesh et Kannan	143
5.11	Comparaison des valeurs de rétention de liquide dans un lit de Katapak-SP12 obtenues à partir de la tomographie avec celles évaluées à partir du modèle de Ratheesh et Kannan	144
5.12	Rétention de liquide en fonction du Facteur F pour un lit de Katapak-SP12 : modèle de Ratheesh et Kannan	145
5.13	Comparaison des valeurs de rétention de liquide dans un lit de Mellapak Plus 752Y obtenues à partir de la tomographie avec celles évaluées à partir du modèle de Delft	146
5.14	Canaux ouverts et canaux fermés dans un empilage de Katapak-SP12 . . .	147
5.15	Comparaison des valeurs de rétention de liquide dans un lit de Katapak-SP11 obtenues à partir de la tomographie avec celles évaluées à partir du modèle de Delft	149
5.16	Comparaison des valeurs de rétention de liquide dans un lit de Katapak-SP12 obtenues à partir de la tomographie avec celles évaluées à partir du modèle de Delft	150
5.17	Rétention de liquide dans un lit de Katapak-SP12 pour un écoulement à contre courant gaz-liquide: modèle Delft vs Tomographie	151
5.18	Rapport entre l'aire interfaciale gaz-liquide et la surface spécifique du Mellapak Plus 752Y en fonction de la vitesse superficielle du liquide	154
5.19	Rapport entre l'aire interfaciale gaz-liquide et la surface spécifique du Katapak SP11 en fonction de la vitesse superficielle du liquide	155
5.20	Rapport entre l'aire interfaciale gaz-liquide et la surface spécifique du Katapak SP12 en fonction de la vitesse superficielle du liquide	156

Liste des tableaux

2.1	Caractéristiques géométriques du Mellapak Plus 752Y (Sulzer Chemtech) .	31
2.2	Caractéristiques géométriques du Katapak-SP12 (Sulzer Chemtech)	33
2.3	Caractéristiques géométriques du Katapak-SP11 (Sulzer Chemtech)	35
3.1	Fraction de vide du Mellapak Plus 752 Y	61
3.2	Comparaison des valeurs de porosité du Katapak-SP12 obtenues par tomographie à rayons X et celle annoncée par Brunazzi et Viva (2006)[9]. . . .	63
3.3	Comparaison des valeurs de porosité du Katapak-SP11 obtenues par tomographie à rayons X et celle annoncée par Brunazzi et Viva (2006)[9]	64
4.1	Valeurs de seuils dans le cas de la colonne irriguée	84
4.2	Comparaison entre valeurs de rétention statique obtenues par tomographie et celles obtenues par la méthode de pesée pour le Katapak-SP11 et le Katapak-SP12.	95
5.1	Rétention statique dans les paniers du Katapak-SP11 rapportée à la section totale de la colonne.	138

Résumé

L'objet du présent travail est l'étude de l'hydrodynamique des écoulements dans des colonnes de distillation réactive et, plus particulièrement, l'analyse par tomographie à rayons X de la distribution spatiale des phases liquide et solide dans des lits parcourus par un écoulement à contre-courant gaz-liquide. La distribution des phases est observée à différents niveaux, depuis l'échelle locale jusqu'à l'échelle de la colonne dans son ensemble.

L'introduction permet tout d'abord de rappeler les principales applications industrielles des colonnes à empilage structuré et modulaire. L'hydrodynamique des écoulements dans ce type d'appareils résulte de phénomènes extrêmement complexes, intervenant à une échelle très petite, c'est ce qui a poussé les chercheurs à développer des modèles de plus en plus détaillés, dont la validation requiert une connaissance de plus en plus fine de la répartition des phases au sein des lits d'empilages. L'obtention de mesures à une échelle très locale s'avère donc indispensable. Un rappel des différentes techniques de mesure de l'hydrodynamique est présenté. Parmi ces dernières, la tomographie à rayons X semble particulièrement bien adaptée, car elle permet d'accéder à la distribution spatiale des différentes phases présentes dans un lit d'empilages de manière non invasive et non intrusive.

Le premier chapitre comprend une définition de la tomographie à rayons X, ainsi que son principe de fonctionnement, et une description des méthodes de reconstruction des images obtenues par cette technique. Une brève comparaison entre les différentes techniques de tomographie permet de justifier le choix de la tomographie à rayons X.

Le second chapitre de ce travail comporte une description de l'installation, du dispositif de tomographie à rayons X, de la programmation des mesures. Le mode opératoire suivi pour la réalisation des différentes mesures est également décrit.

Le troisième chapitre traite surtout de l'analyse des images de différents empilages secs obtenues par tomographie à rayons X. La fraction de vide et la surface spécifique de chaque type d'empilages étudié dans ce travail, sont déterminées sur base des images tomographiques d'empilages secs. Ces valeurs sont comparées avec celles annoncées par

le fabricant, ainsi qu'avec des valeurs estimées sur base des caractéristiques géométriques des empilages.

Le quatrième chapitre décrit les résultats obtenus sur base des images de sections droites de la colonne irriguée. Les images obtenues sur des sections irriguées font d'abord l'objet d'une analyse purement qualitative. Cette analyse permet d'observer la distribution spatiale des fluides au sein du lit d'empilage pour différents débits de liquide et de gaz. Ensuite, les valeurs statiques et globales de la rétention de liquide sont calculées sur base des images reconstruites en niveaux de gris. Afin de valider les résultats obtenus par tomographie, des comparaisons sont effectuées avec des résultats expérimentaux présentés dans la littérature. L'influence de la viscosité sur les valeurs de rétentions de liquide est également étudiée. Le point de charge dans les paniers catalytique des empilages modulaires (Katapak-SP11 et Katapak-SP12) est mesuré et discuté. La perte de charge est mesurée pour différents débits de liquide et de gaz. Des comparaisons avec la littérature sont également effectuées. L'aire interfaciale gaz-liquide est mesurée sur les images binarisées de sections droites d'empilage irrigué.

Le cinquième chapitre traite des comparaisons des valeurs de rétention, de perte de charge et de l'aire interfaciale gaz-liquide avec des corrélations disponibles dans la littérature.

Le manuscrit se termine par un résumé de l'ensemble des résultats obtenus tout au long de ce travail ainsi que des perspectives d'avenir.

Introduction

Préambule

Le présent travail de thèse a été réalisé dans le cadre d'une Action de Recherche Concertée intitulée "Techniques expérimentales avancées et modélisation par automates cellulaires de systèmes multiphasiques : Application aux colonnes de distillation et de distillation réactive". L'objectif de cette recherche est le développement de nouveaux outils de simulation et de caractérisation expérimentale de l'hydrodynamique dans les systèmes complexes gaz-liquide-solide. La recherche porte plus particulièrement sur les colonnes de distillation et de distillation réactive, car ces appareils, gros consommateurs d'énergie, sont au coeur des défis auxquels le monde industriel est confronté en termes de développement durable. On estime en effet à plus de 109 Gcal/an la consommation énergétique liée aux opérations de distillation intervenant dans les procédés de raffinage et dans les procédés continus de l'industrie chimique (Adler et al.[27], 2000). L'amélioration des performances de ces appareils permettrait donc de réduire considérablement la facture énergétique et environnementale (émissions de gaz à effet de serre) liée à leur utilisation.

Etat de l'art

Distillation et distillation réactive

La distillation implique la mise en contact d'une phase liquide et d'une phase vapeur, qui est réalisée en faisant circuler ces phases fluides à contre-courant dans une colonne à plateaux ou dans un lit fixe constitué d'éléments d'empilage aléatoires ou structurés. La complexité inhérente à la structure des écoulements gaz-liquide rend difficile le calcul prédictif et le contrôle des installations. De nombreuses recherches ont été réalisées, principalement dans le domaine industriel, pour améliorer les performances des colonnes à distiller par des modifications au niveau du design des éléments d'empilage (Olujic et al.[41], 2003). Il a en effet été démontré que les petits détails géométriques de l'empilage (angle des ondulations, état de surface des tôles,... , dans les empilages structurés) peuvent avoir une influence importante sur la capacité de la colonne. Ces nombreux développements industriels n'ont cependant pas permis d'accéder à une compréhension complète

des mécanismes qui régissent le transfert de matière entre les phases et l'hydrodynamique des écoulements gaz-liquide. Ce manque de compréhension constitue un des verrous technologiques qu'il convient de faire sauter si on désire améliorer significativement l'efficacité de ces installations, notamment du point de vue énergétique. La distillation réactive est une démarche qui permet une intensification des procédés basée sur un couplage étroit des opérations de réaction et de séparation. La première application de distillation réactive a été brevetée dans les années 1920 pour des réactions autocatalysées en phase homogène, comme des réactions d'hydrolyse ou d'estérification. La catalyse hétérogène en distillation réactive est apparue dans les années 1960. La distillation réactive a connu un regain d'intérêt dans les années 1990, en raison de la demande croissante de technologies "durables". Cette technologie et les équipements associés ont alors fait l'objet de très bons articles de revues, comme ceux de Stichlmair & Frey[32] (1999) ou de Towler & Frey[33] (2000). Les procédés industriels illustrant le mieux cette technique sont la production d'acétate de méthyle et des éthers oxygénés.

Par définition, la distillation réactive intègre deux étapes du procédé, l'étape de réaction et l'étape de purification, dans un seul appareil, en insérant un module de réaction dans une colonne de distillation. De cette manière, il est possible de dépasser les limites de conversion rencontrées dans un procédé traditionnel en présence d'une réaction limitée à un équilibre. La séparation en continu d'un produit de la réaction peut également permettre un accroissement de sélectivité, grâce à l'élimination de réactions secondaires susceptibles de dégrader le produit. Elle permet aussi d'éviter l'éventuelle inhibition du catalyseur par un des produits de la réaction. Dans le cas de réactions exothermiques, un des avantages majeurs de la distillation réactive vient de l'intégration énergétique des étapes de réaction et de séparation : la chaleur dégagée par la réaction peut être utilisée directement pour la distillation sans nécessiter de dispositif annexe. La conception des colonnes de distillation réactive est nettement plus complexe que celle des colonnes de distillation ou des réacteurs chimiques. La présence de zones de réaction et de zones de séparation dans un même appareil conduit à des interactions très complexes entre l'hydrodynamique, les équilibres liquide-vapeur, le transfert de matière gaz-liquide, la diffusion intra et extra granulaire et la cinétique chimique. Le design de ces équipements est donc loin d'être évident, surtout dans le cas de réactions menées en présence d'un catalyseur solide. Différentes configurations d'empilage de distillation réactive proposées dans la littérature sont basées sur l'alternance régulière de zones à faible perméabilité (zones de réaction catalytique) et de zones à haute perméabilité (zones de séparation) (Towler & Frey[33], 2000, Van Hasselt et al. [38], 1999, Ratheesh et al. [24], 2004). Ces structures en formes de « sandwich » permettent de postposer le phénomène d'engorgement (« flooding ») au delà des conditions opératoires habituelles et offrent de nouvelles possibilités. Dans ces empilages, le catalyseur solide est généralement sous la forme de particules enfermées dans des paniers en treillis. Ces zones de réaction sont séparées par des canaux ouverts ou par des feuilles d'empilage structuré classiques. L'agencement des zones catalytiques et les feuilles d'empilage peut être adapté de manière à s'ajuster au mieux au procédé parti-

culier. Cependant, cette flexibilité ne peut être exploitée que si l'on maîtrise parfaitement la distribution des phases fluides entre les zones à haute et à faible perméabilité.

Différentes techniques de mesures

De nombreuses études sont en cours pour améliorer les performances des procédés mis en oeuvre dans une colonne de distillation réactive (Ratheesh et al [24], 2004, Krishna [17], 2002, P. Moritz et al [20], 1999). Pour ce faire, la connaissance de l'hydrodynamique de l'écoulement des phases liquide et gazeuse est nécessaire. En effet, la qualité du contact entre les deux fluides dépend fortement de la manière dont elles sont distribuées au sein de l'empilage. Un grand nombre de paramètres doivent être pris en compte. Il s'agit des débits et des propriétés physico-chimiques du liquide et du gaz, de la géométrie des éléments de l'empilage, ainsi que leurs propriétés de surface. La répartition des phases gazeuses et liquides est donc primordiale. Afin d'assurer le meilleur transfert de matière et de chaleur entre ces deux phases, une maximisation de l'aire interfaciale gaz-liquide est donc nécessaire.

Pour une très bonne compréhension de l'hydrodynamique d'une colonne de distillation réactive, plusieurs grandeurs devront être mesurées telles que : la perte de charge, la rétention de liquide pour différents débits de liquide et de gaz. Différentes techniques de mesures de rétentions de liquide existent dans la littérature.

Méthode par pesée

La méthode par pesée consiste à peser en continu la colonne en l'absence et en présence d'un écoulement de liquide et ou de gaz. Pour déterminer la rétention totale de liquide, quelques mesures préliminaires sont nécessaires :

- peser la colonne en l'absence de liquide (w_1) ;
- peser la colonne complètement remplie de liquide (w_2) ;
- peser la colonne en présence d'un écoulement de liquide (w) ;

On obtient ainsi la relation suivante qui permet de déterminer la valeur de la rétention totale de liquide :

$$\varepsilon_L = \frac{w - w_1}{w_2 - w_1} \quad (1)$$

Cependant, l'accès aux valeurs locales n'est pas possible et la précision des mesures est fonction de la limite de la pesée. De plus, l'équipement n'est pas simple car il faut que les matériels auxiliaires qui relient la colonne aux structures fixes doivent être choisis aussi souples que possible afin d'éviter de fortes perturbations dans la mesure du poids.

Méthode de drainage

La méthode de drainage est très appréciée pour sa simplicité de mise en oeuvre (Viva et al, 2008 [40]) car elle ne nécessite pas l'ajout d'équipements lourds. En effet, le principe de cette méthode consiste à établir un écoulement gaz-liquide dans la colonne et dès que l'écoulement est stable, on arrête l'alimentation en fluide et on récupère le liquide qui draine du lit. De cette façon, on détermine la quantité de liquide retenue par le lit d'empilage pour certains débit de liquide et de gaz. Des précautions doivent être prises pour ne pas sur estimer les valeurs de rétention de liquide. Il s'agit de ne pas tenir compte dans l'estimation de la rétention, de la quantité de liquide présente dans le distributeur et dans les tuyaux d'alimentation de liquide. Cette méthode ne permet de fournir que la rétention dynamique et pas la rétention statique. En effet, vu que la rétention statique représente la quantité de liquide piégée dans le lit d'empilage, ce liquide ne pourra donc pas être récupéré par drainage.

Méthode par différence de niveaux

La méthode par différence de niveaux consiste à mesurer la différence de niveau de liquide dans le bassin d'alimentation de liquide entre le moment où la colonne n'est pas parcourue par du liquide et le moment où la colonne est parcourue par un écoulement stable de liquide. La différence de niveau permet ainsi de connaître la quantité de liquide présente dans le lit d'empilage. Cependant, il faut également faire attention de ne pas tenir compte de la quantité de liquide présente dans les tuyaux d'alimentation pour ne pas sur estimer la valeur réelle de la rétention de liquide (Behrens, 2006 [3]). Contrairement à la méthode de drainage, cette méthode par différence de niveaux en fonction de l'état de référence choisi permet d'accéder à la rétention totale, dynamique et statique.

Méthode par traceur

La méthode par traceur est également très fréquemment employée dans la littérature (Brunazzi et al, 2006 [9] ; Viva, 2008 [40]). Cette méthode permet d'accéder à différentes caractéristiques hydrodynamiques de l'écoulement du liquide telle que la rétention de liquide. Le principe de cette méthode consiste à injecter un traceur liquide dans la colonne. Ensuite, il s'agit de suivre en fonction du temps les concentrations de traceur présent dans le flux liquide d'une part à l'entrée et d'autre part à la sortie de la colonne. En déterminant le temps de séjour moyen du liquide, il est possible d'estimer la rétention totale de liquide. Cependant, cette méthode présente des inconvénients : choix du traceur en fonction du liquide en écoulement dans la colonne (viscosité et densité presque similaires), accès seulement à la rétention dynamique, mesure peu précise si la phase liquide est très dispersée.

Toutes les méthodes citées ci-dessus ne permettent d'obtenir qu'une valeur globale de la rétention et ne fournissent aucune indication sur la manière dont le liquide est distribué

au sein de la colonne. C'est la raison pour laquelle nous avons opté pour la tomographie à rayons X qui permet d'accéder à ces informations locales tout en étant non invasive et non intrusive.

Position du présent travail

Le but de cette thèse est de collecter des données expérimentales aussi précises et aussi complètes que possible, permettant de déterminer les mécanismes hydrodynamiques qui interviennent dans les empilages de distillation réactive. La tomographie à rayons X est utilisée pour mesurer la distribution des phases à différentes échelles, depuis l'échelle locale des détails de l'empilage, jusqu'à l'échelle de la colonne dans son ensemble. Les résultats obtenus permettent non seulement de quantifier les grandeurs hydrodynamiques macroscopiques comme la rétention ou l'aire interfaciale mais, ils permettent également et surtout d'expliquer leur évolution en fonction de la structure de l'empilage et des conditions opératoires. Les informations ainsi obtenues fournissent les bases pour le développement d'un modèle hydrodynamique, plus détaillé, susceptible de rendre compte, à l'échelle macroscopique, de l'influence des diverses variables opératoires et des propriétés physico-chimiques des phases en contact, sur le fonctionnement des appareils.

Chapitre 1

La tomographie à rayons X

1.1 Définition

Tomographie : (racine grecque, tomê, section et graphein, décrire). Procédé qui consiste à reconstruire le volume d'un objet (exemple : le corps humain dans le cas de l'imagerie médicale, une structure géologique dans le cas de la géophysique) à partir d'une série de mesures réalisées à la périphérie de l'objet (données de projections).

De nombreuses techniques tomographiques existent et se différencient principalement les unes des autres par leur résolution spatiale, ainsi que la simplicité ou non de la reconstruction numérique des images :

- IRM (imagerie à résonance magnétique) ou RMN est une technique d'imagerie très attractive qui utilise pour source de rayonnement un champ magnétique intense qui émet des ondes radioélectriques excitées par impulsions et détectées sous forme d'anneaux . Elle possède une bonne résolution spatiale et temporelle, permettant ainsi d'obtenir des images de la distribution du liquide sur des empilages structurés tels que des monolithes en céramique (Gladden et al, 2003[10]) ou d'analyser le régime d'écoulement pulsé dans un lit fixe de particules pressées. (Lim et al, 2004[18]). Cependant, la plupart des empilages structurés utilisés dans des colonnes de distillation sont en métal, lesquels ne sont pas du tout compatibles avec l'IRM.
- La tomographie à rayons X commence à être employée dans l'étude de colonne à empilages (Green, 2006[12] ;Toye et al, 2005[34]). La résolution spatiale est inférieure à 0,4 mm et permet donc de distinguer les détails de l'empilage sur les images reconstruites. Il s'agit d'une méthode non intrusive et non invasive.
- La tomographie à rayons γ est une méthode de choix pour l'obtention d'images d'objet de forte densité et de grande dimension. Elle s'applique assez facilement dans l'analyse de la distribution du liquide dans des colonnes de grand diamètre contenant un empilage structuré (Roy et al, 2004[26]) ou des particules poreuses (Boyer et Fanger, 2002[6]). Cependant, la résolution spatiale (quelques mm) est plus basse que dans le cas de la tomographie à rayons X et les détails des éléments

de l'empilage ne peuvent donc pas être distingués sur les images reconstruites.

- La tomographie électrique ne peut être considérée dans ce travail à cause de sa très faible résolution spatiale, qui vaut approximativement 10 % de la section droite (Beck et Williams, 1996[1] ; Toye et al, 2003[35]).

Le choix s'est porté sur la tomographie à rayons X qui est très bien maîtrisée à ce jour. En effet, comparées aux autres techniques, elle permet, grâce au grand pouvoir pénétrant du rayonnement X d'étudier des systèmes présentant une forte densité. De plus, les rayons traversent l'objet en ligne droite, sans aucune diffraction, de sorte que la reconstruction des images est linéaire, permettant ainsi l'obtention d'une bonne résolution spatiale.

La tomographie à rayons X est donc une technique non destructive qui permet la reconstruction d'une section droite d'un objet à partir de ses projections, obtenues en illuminant l'objet sous un grand nombre d'angles différents. Le tomographe comporte généralement un collimateur permettant de réduire l'épaisseur du faisceau produit par la source de rayons X. Ce faisceau ne pénètre que dans la couche que l'on désire examiner. Ce qui permet ainsi au niveau de l'image reconstruite d'éviter toute interférence qui pourrait être provoquée par toutes les autres sections de l'objet. (Figure1.1)

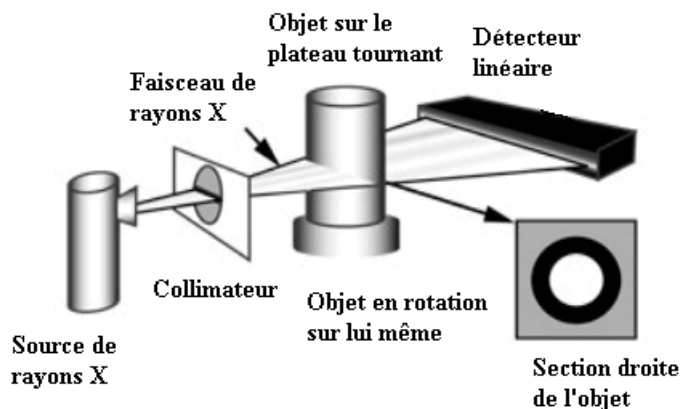


FIGURE 1.1: Principe de la tomographie à rayons X

1.2 Principe de la tomographie à rayons X

Considérons un système de coordonnées cartésiennes (x,y) , toute section droite peut être représentée par une fonction à deux dimensions :

$$f(x, y) = \mu(x, y) \quad (1.1)$$

où $\mu(x,y)$ est la valeur du coefficient d'atténuation au point (x,y) (Figure 1.2). Chaque rayon peut être défini par un couple de paramètres (ϑ, t) , ϑ étant l'angle entre le rayon et l'axe des y et t la distance entre le rayon et l'origine des axes.

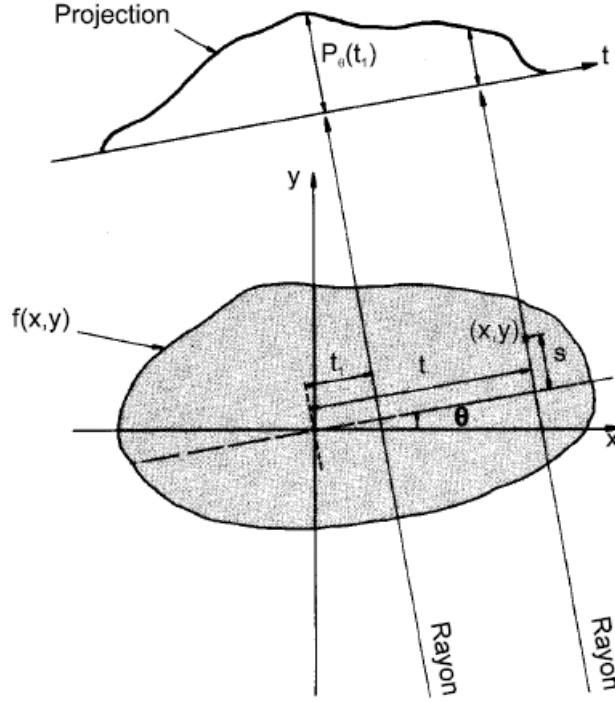


FIGURE 1.2: Projection d'un objet pour un angle ϑ (Kak et Slaney, 1988 [15])

L'intégrale de ligne correspond à l'intégrale de la fonction $f(x,y)$ le long du rayon (ϑ, t) :

$$P_\vartheta(t) = \int_{(\vartheta, t) \text{ ligne}} \mu(x, y) ds \quad (1.2)$$

Dans le cas des rayons X, cette intégrale de ligne est proportionnelle au logarithme du signal mesuré par le détecteur. En effet, pour une source monochromatique, l'intensité du rayonnement transmis I , est donnée par la loi d'atténuation des rayons X :

$$I = I_0 \exp \left[- \int_{\text{rayon}} \mu(x, y) ds \right] \quad (1.3)$$

dans laquelle I_0 est l'intensité du rayonnement incident. On obtient donc :

$$P_\vartheta(t) = - \ln \left(\frac{I}{I_0} \right) \quad (1.4)$$

La tomographie à rayons X se base donc sur le fait que chaque matière est caractérisée par un coefficient d'atténuation linéaire des rayons X (μ), qui dépend de son nombre atomique (Z) et de sa densité (ρ), ainsi que de l'énergie du rayonnement incident (E) selon la relation suivante (Vinegar et al., 1987[39]) (Figure 1.3).

$$\mu = \rho \left(a + \frac{bZ^{3.8}}{E^{3.2}} \right) \quad (1.5)$$

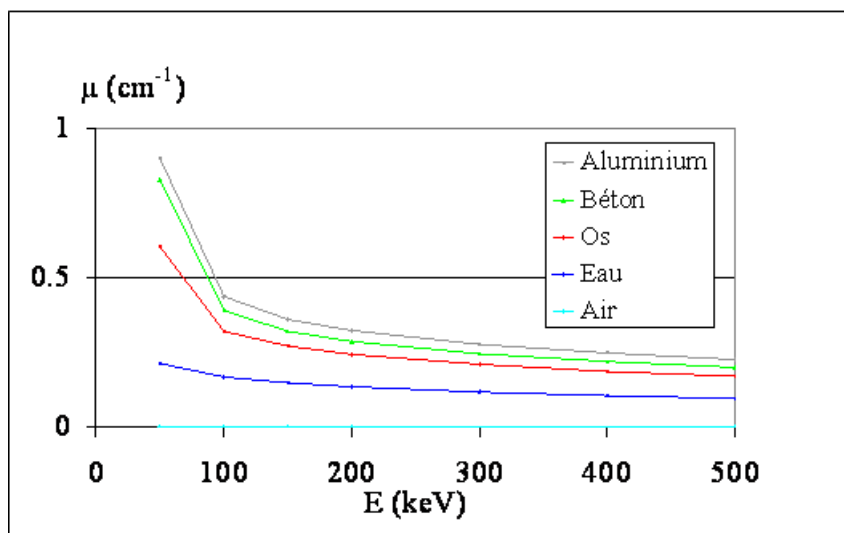


FIGURE 1.3: Coefficient d'atténuation des rayons X pour différents matériaux en fonction de l'énergie des rayons X

Une projection correspond donc à un ensemble d'intégrales de lignes relatives à une même position angulaire de mesure. Selon la manière dont les rayons sont disposés dans le faisceau incident, on parlera de projection parallèle (Figure 1.4a) ou de projection plan angulaire (Figure 1.4b).

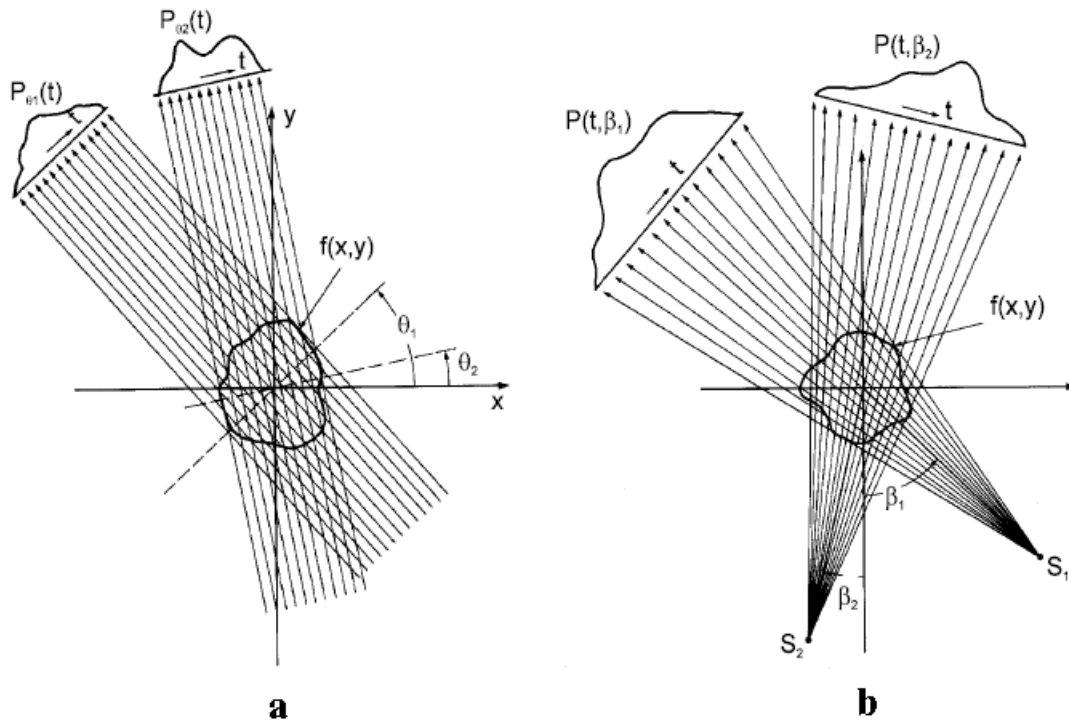


FIGURE 1.4: (a) Projection parallèle, (b) Projection angulaire (Kak et Slaney, 1988 [15])

1.3 Reconstruction

Il existe de nombreuses méthodes de reconstruction de l'image mais les plus utilisées sont essentiellement la rétro-projection et la rétro-projection filtrée (Brooks et al, 1976[7]). La rétro-projection consiste à additionner les données brutes de chaque projection. Cependant, cette technique entraîne la présence d'un artéfact (« le blurring ») suite à la superposition des rayons correspondant aux différents angles. Cela s'explique par la prise en compte de l'ensemble des points situés sur le faisceau de rayons, qu'ils appartiennent ou non à l'objet (Figure 1.5). Ce phénomène est d'autant plus marqué que les variations de densité au sein de l'échantillon étudié sont abruptes. Il n'est donc pas possible d'obtenir une image correcte par simple rétro-projection.

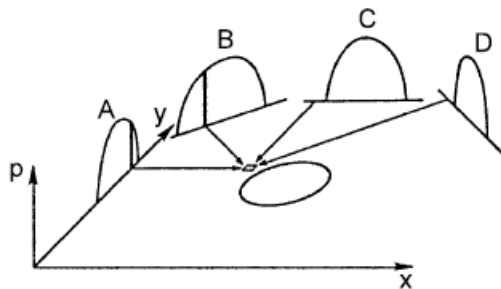


FIGURE 1.5: Rétro-projection. 4 projections d'un objet circulaire sont représentées. La petite cellule située en dehors de l'objet original reçoit une contribution non nulle (Brooks et al., 1976[7]).

Tandis que la seconde méthode utilise un filtre qui permet de corriger ce « blurring » en attribuant des valeurs d'atténuation négatives aux points situés en dehors de l'objet. Les projections ainsi filtrées contiennent des valeurs positives et négatives qui se compensent lorsqu'elles sont rétro-projetées en des points situés en dehors de l'échantillon étudié (Figure 1.6). Cette opération, appelée convolution, rend donc possible l'obtention d'une image sans artéfact. C'est cette méthode qui est utilisée dans ce travail pour la reconstruction des images. Des modifications ont été apportées pour tenir compte de la géométrie du système de radiographie utilisé, à savoir un faisceau incident plan angulaire, suivant la méthode décrite dans la littérature (Kak et Stanley, 1988[15]).

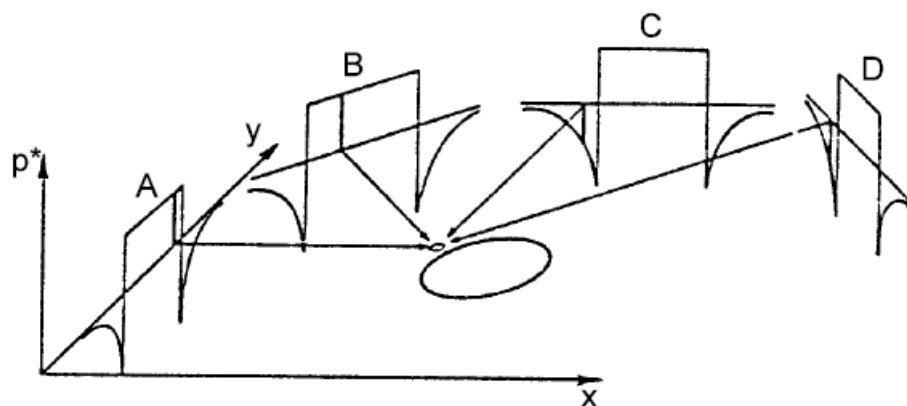


FIGURE 1.6: Rétro-projection filtrée. Les projections filtrées sont rétro-projetées pour reconstruire l'objet original. Le point situé en dehors de la section circulaire reçoit des contributions positives et négatives qui se compensent (Brooks et Di Chiro, 1976 [7]).

Chapitre 2

Dispositif expérimental

2.1 La colonne et les systèmes de circulations des fluides

La Figure 2.1 montre un schéma de l'installation expérimentale qui est principalement constituée d'une colonne en PVC transparent de 0.1 m de diamètre et de 4 m de hauteur. La colonne est parcourue par un écoulement à contre-courant de gaz (air) et de liquide (eau de ville). Le liquide est alimenté au sommet de l'empilage par un distributeur multiponctuel. Il circule en boucle fermée grâce à une pompe volumétrique dont le débit peut être réglé manuellement. Le débit de liquide est mesuré grâce à un débitmètre à flotteur. Sa vitesse superficielle est comprise entre 4.97 et 38 m³/m².h. Le gaz est fourni par un ventilateur. Ce gaz est alimenté en pied de colonne au niveau du séparateur gaz-liquide. Le débit est ajusté par une vanne manuelle et est mesuré grâce à des débitmètres à flotteur travaillant dans différentes gammes de débits. La vitesse superficielle du gaz varie entre 0.5 et 2 m/s.

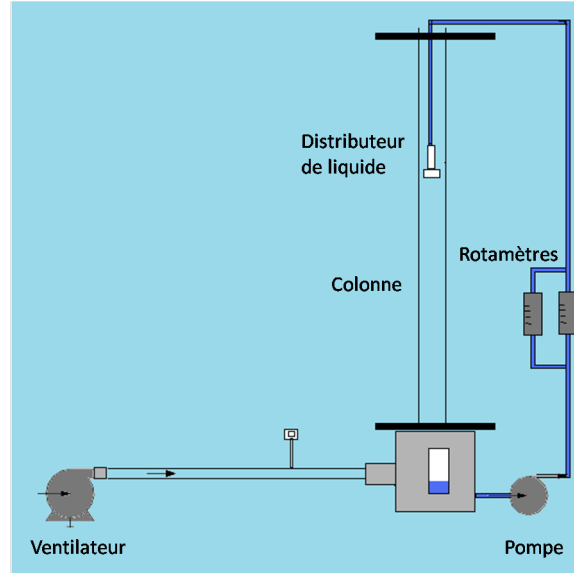


FIGURE 2.1: Schéma de l'installation expérimentale

2.2 Les empilages

Divers empilages structurés et modulaires ont été utilisés dans ce travail : Mellapak Plus 752Y, Katapak-SP12 et Katapak-SP11. Ces éléments d'empilages métalliques de 0.1 m de diamètre et de 0.2 m de hauteur sont fournis par Sulzer Chemtech.

2.2.1 Mellapak Plus 752Y

Le Mellapak 752Y (Figure 2.2, Tableau 2.1) est un empilage structuré, dont les éléments sont formés par la juxtaposition de feuilles ondulées de 1.2 mm d'épaisseur disposées verticalement. La hauteur des ondulations (« corrugation height ») est égale à 13 mm. Les feuilles ondulées sont perforées de trous ovales et circulaires de diamètre de 4 mm. La Figure 2.3 représente la colonne contenant le lit de Mellapak Plus (M1, M2, M3, M4). Les éléments d'empilage structuré sont placés perpendiculairement les uns par rapport aux autres. De plus, on a placé au dessus du lit de Mellapak, un lit d'empilage aléatoire (Pall rings (PR), Figure 2.4), afin d'assurer une distribution uniforme de liquide au sein du lit de Mellapak Plus.

Hauteur de l'élément d'empilage	0.2 m
Diamètre de l'élément d'empilage	0.09 m
Surface spécifique	510 m ² / m ³
Fraction de vide	97.5 %
Angle d'inclinaison des ondulations	41°
Base des ondulations	9.85 mm
Hauteur des ondulations	6.50 mm

Tableau 2.1: Caractéristiques géométriques du Mellapak Plus 752Y (Sulzer Chemtech)



FIGURE 2.2: Photographie du Mellapak Plus 752Y



FIGURE 2.3: Schéma de la colonne contenant un lit de Mellapak Plus 752Y



FIGURE 2.4: Photo d'un empilage aléatoire : le Pall ring

2.2.2 Katapak-SP12

Le Katapak-SP12 (Figure 2.5, Tableau 2.2) est un empilage modulaire et se différencie du Mellapak par la présence de trois paniers en treillis, pouvant contenir des particules de catalyseur. Dans le cadre de ce travail, les paniers contiennent des billes de verre, non poreuses, de 1 mm de diamètre. Les paniers de catalyseur sont séparés entre eux par des feuilles d'empilage de Mellapak Plus 752Y. Le suffixe 12 indique une alternance de 1 panier catalytique qui constitue la zone de réaction et de 2 feuilles d'empilage qui constituent la zone de séparation. Les différents éléments de Katapak-SP12 sont également placés perpendiculairement les uns par rapport aux autres. On a placé de part et d'autre du lit de Katapak-SP12 (K1, K2, K3, K4), des éléments de Mellapak Plus 752Y (M1, M2, M3, M4) afin d'assurer une distribution uniforme du liquide et de gaz au sein du lit d'empilage modulaire (Figure 2.6).

Hauteur de l'élément d'empilage	0.2 m
Diamètre de l'élément d'empilage	0.09 m
Surface spécifique	$342 \text{ m}^2 / \text{m}^3$
Fraction de vide	70 %
Fraction de vide dans les paniers catalytiques	38 %
Rapport du nombre de zones de réaction et du nombre de zones de séparation	1 : 2

Tableau 2.2: Caractéristiques géométriques du Katapak-SP12 (Sulzer Chemtech)



FIGURE 2.5: Vue de haut d'un élément de Katapak-SP12



FIGURE 2.6: Schéma de la colonne contenant un lit de Katapak-SP12



FIGURE 2.7: Vue du haut d'un élément de Katapak-SP11

2.3 Le tomographe à rayons X

La distribution des phases dans les sections droites de la colonne est mesurée grâce à un dispositif de tomographie à rayons X (Figure 2.9). Le tomographe est composé d'une source RX et d'un détecteur linéaire. Le générateur haute tension du tomographe est un générateur de type Baltograph CS450A à potentiel constant, fabriqué par la société Balteau NDT, en Belgique. Il est constitué de deux unités haute tension utilisant du gaz SF₆ comme isolant. Ce générateur permet de travailler entre 30 et 420 kV. La source de rayons X, dont la tache focale mesure 0.8x0.8 mm², est un tube bipolaire TSD420/0, muni d'un système de refroidissement à l'huile et à l'eau, et qui produit un faisceau plan angulaire collimaté de 40° d'ouverture et de 1 mm d'épaisseur. Les mesures présentées dans ce travail ont toutes été réalisées avec un courant de 3.5 mA et une tension de 420 kV. Le détecteur linéaire est un X-Scan 0.4f2-512-HE fabriqué en Finlande par la société Detection Technology. Il s'agit d'un banc de 1280 photodiodes, de 512 mm de long avec un pas de 0.4 mm, chaque photodiode a une largeur de 0.3 mm et une hauteur de 0.6 mm. Le temps d'intégration peut être fixé entre 0.67 et 15 ms. Les caractéristiques du détecteur et du manipulateur permettent d'obtenir des images dont les pixels ont une dimension de 360µm x 360µm. Le manipulateur du tomographe permet la gestion de trois mouvements :

- Le déplacement vertical du bras mobile supportant le tube RX d'une part et le détecteur linéaire d'autre part. La position verticale du bras peut être comprise entre 150 et 3800 mm avec une précision de 0.1 mm ;
- La rotation de l'objet placé sur le plateau tournant ;

- La rotation du bras mobile de la position de calibrage (aucun objet entre la source et le détecteur) à la position de travail et vice versa.

Les trois mouvements du manipulateur sont motorisés et leur contrôle se fait à partir d'un écran tactile qui comprend les commandes suivantes :

- Réarmement des relais de sécurité ;
- Initialisation de l'axe vertical ;
- Positionnement manuel ou automatique du bras du tomographe ;
- Engagement ou dégagement du bras ;
- Choix du nombre d'images par tour, qui est limité à 42 valeurs comprises entre 480 et 12800 ;
- Séquence d'images multiples : Elle permet d'exécuter un tour complet (360°). Pendant la rotation de l'objet, le système va générer un nombre d'impulsions équidistantes égal au nombre d'images choisi ;
- Séquence d'image unique : Elle permet de mettre l'objet dans une position angulaire donnée.

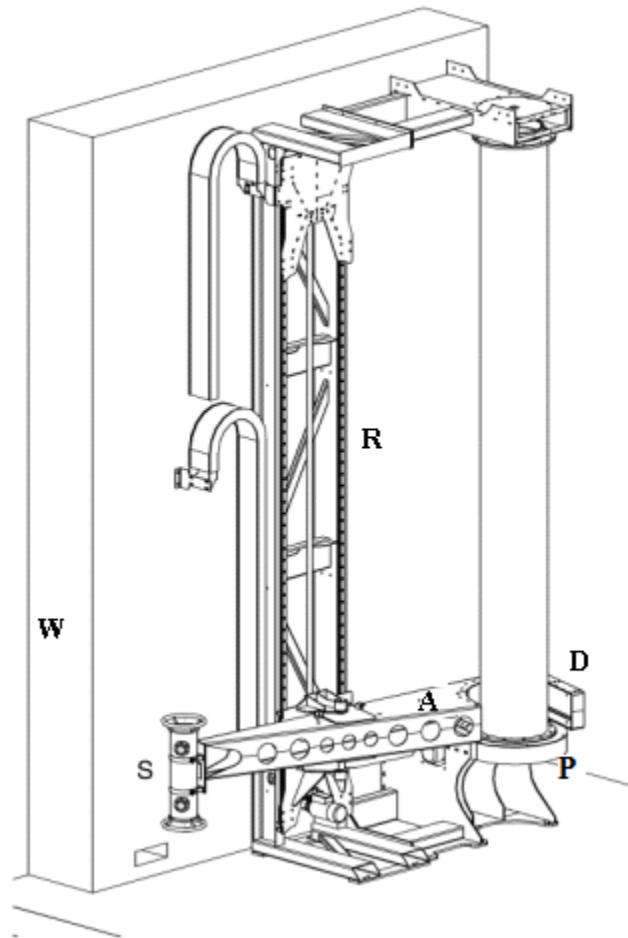


FIGURE 2.9: Dispositif de tomographie à rayons X. A : bras du tomographe ; S : source de rayons X ; D détecteur ; P : plateau tournant ; R : rails ; W : mur en béton de 0.6 m de largeur

2.4 Programmation des mesures

Le détecteur linéaire est connecté à un PC afin de permettre sa configuration (paramétrage, calibrage). Et pour ce faire, on a utilisé le software Soft-Lyser. Comme on peut le voir sur la Figure 2.10 ci-dessous, la fenêtre de travail de ce logiciel est divisée en trois sous-fenêtres :

- Fenêtre gauche : cette fenêtre représente une prévisualisation de la capture effectuée permettant ainsi de s’assurer que les données acquises sont cohérentes (exemple : absence d’obstacle entre la cible et la source d’émission de rayons X) ;
- Fenêtre supérieure droite : elle reprend les paramètres de configuration du détecteur. (exemple : Integration Time est le paramètre le plus important, car il permet de configurer le temps d’intégration du détecteur pour le mode capture en mode rotation) ;
- Fenêtre inférieure droite : dans cette fenêtre se trouvent les paramètres permettant de modifier l’aspect de l’affichage dans la la fenêtre de visualisation (nombres de bits,...).

2.5 Mode opératoire du tomographe

Toutes les mesures ont été réalisées à haute énergie (420 kV et 3.5 mA). Le mode opératoire est le suivant :

- Réarmement de tous les relais de sécurité ;
- Préchauffage de la source d’émission de rayons X ;
- Choix des paramètres de la source (voltage, intensité,...) en fonction de la densité et du diamètre de l’objet étudié ;
- Initialisation de l’axe vertical du bras ;
- Dégager le bras et effectuer le calibrage du détecteur via le logiciel Soft-Lyser sans aucun objet entre la source et le détecteur, de manière à fixer les gains et les offsets des 1280 photodiodes ;
- Engager le bras afin que l’objet se trouve entre la source et le détecteur ;
- Choisir le nombre de projections (entre 480 et 12 800) ;
- Choisir le nombre d’images de sections droites en fixant le pas et les positions verticales initiales et finales du bras (entre 150 et 3800 mm) ;
- Choisir le type de séquence souhaité ;
- Lancer la mesure. Toutes les 14 ms (ce temps dépend du nombre de projections choisi), le système envoie, vers un PC d’acquisition, les 1280 valeurs d’intensités mesurées et la valeur de la position angulaire. Un scan dure environ 1 minute ;
- Sauvegarde automatique des projections obtenues sous format .BIN (6.4 MB pour 2560 projections), qui pourront ensuite être traitées sous Matlab.

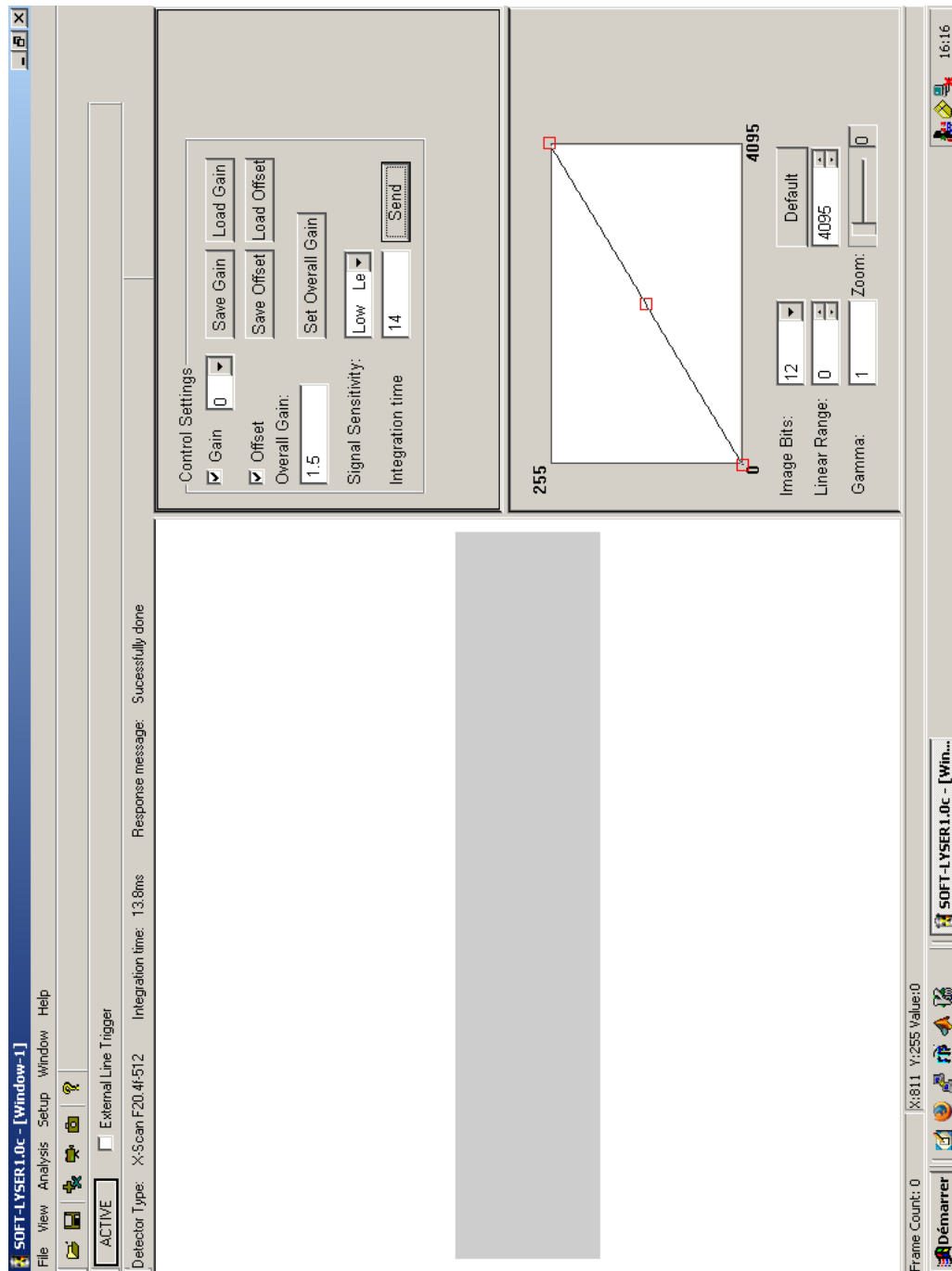


FIGURE 2.10: Fenêtre du logiciel Soft-Lyser

Chapitre 3

Analyse des images de sections droites de l'empilage sec

3.1 Introduction

Des mesures tomographiques ont tout d'abord été réalisées sur la colonne sèche pour différentes hauteurs. La colonne a été successivement remplie avec des éléments de Mellapak Plus 752Y, de Katapak-SP12 et de Katapak-SP11.

La reconstruction d'images des sections droites est réalisée en utilisant la méthode de rétro-projection filtrée. Ces images sont traitées sous Matlab 7, où elles vont subir divers traitements (application d'un masque, normation, seuillage,...) afin d'améliorer leur représentation graphique et d'associer une signification physique réelle aux valeurs des pixels qui composent ces images.

Mellapak Plus 752Y

Il s'agit d'un empilage structuré constitué de feuilles métalliques ondulées, percées de trous et disposées verticalement côte à côte. Les ondulations ont une base de 9.85 mm, une hauteur de 6.50 mm et sont inclinées de 45° par rapport à la verticale. L'élément utilisé a un diamètre de 9 cm et une hauteur de 20 cm. La Figure 3.1 représente une section droite de la colonne. Il s'agit de l'image brute, comportant 499x499 pixels et n'ayant subi aucun traitement après sa reconstruction. Sur cette image, on peut voir la paroi de la colonne (1) et le wall wiper (2), qui permet de maintenir ensemble les feuilles ondulées et de redistribuer le liquide vers l'intérieur de l'élément d'empilage. On peut observer également les feuilles ondulées formant l'empilage (3) ainsi que la présence de trous sur les feuilles ondulées (4). La tomographie à rayons X permet donc bien de détecter les détails géométriques de l'empilage.

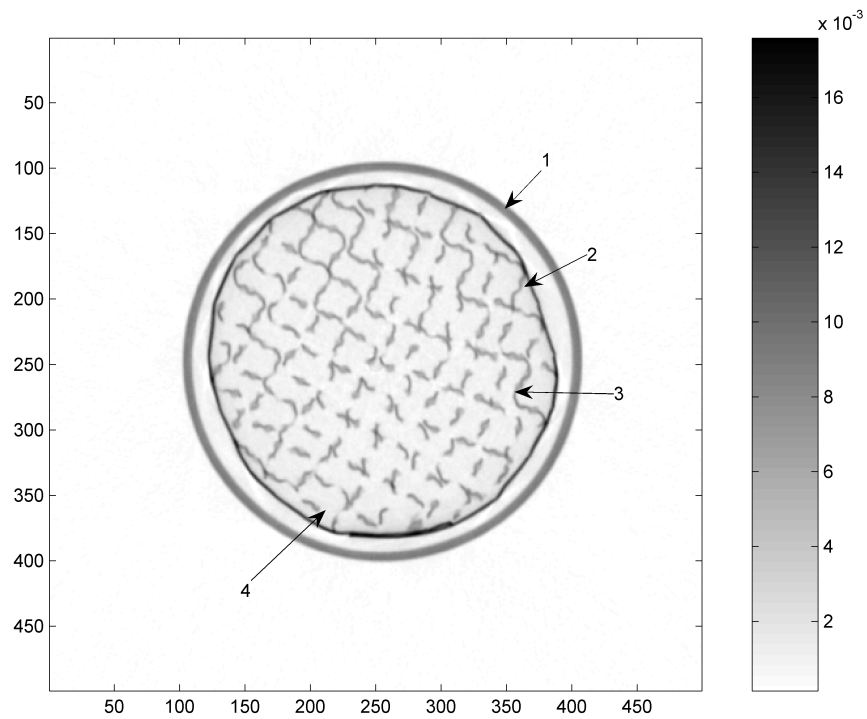


FIGURE 3.1: Image brute en niveaux de gris d'une section droite d'un empilage de Mellapak Plus 752Y

Katapak-SP12

La Figure 3.2 montre l'image brute d'une section droite d'un élément de Katapak-SP12. On observe que cet empilage se différencie du Mellapak Plus 752Y par la présence de 3 paniers (3a et 3b), qui contiennent, dans notre cas, des billes de verre de 1 mm de diamètre. La résolution spatiale du tomographe n'est pas suffisante pour distinguer les billes de verre. Ces paniers correspondent à la zone de réaction et sont séparés par des feuilles ondulées (2), qui correspondent à la zone de séparation. Les trous sur les feuilles de l'empilage structuré (5) sont aussi visibles sur cette image. Le cercle gris foncé correspond à la paroi de la colonne (1). On distingue également le wall wiper (4), qui permet de maintenir ensemble les feuilles ondulées et les paniers et de redistribuer le liquide vers l'intérieur de l'élément d'empilage.

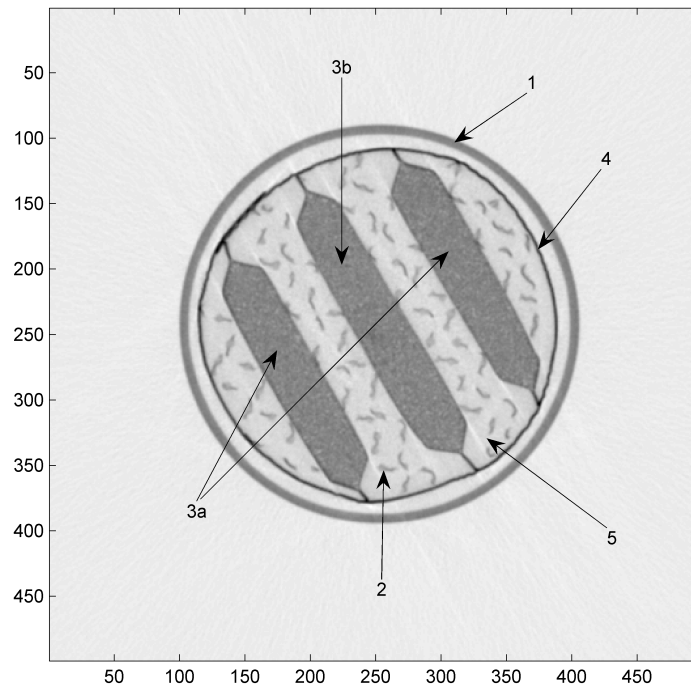


FIGURE 3.2: Image brute en niveaux de gris d'une section droite d'un empilage de Katapak-SP12

Katapak-SP11

La Figure 3.3 montre l'image brute d'une section droite d'un élément de Katapak-SP11. On observe que cet élément d'empilage se différencie du Katapak-SP12 par la présence de 4 paniers au lieu de 3 et la présence d'une seule feuille de Mellapak Plus 752Y entre chaque panier. En effet, le symbole SP11 signifie bien un panier suivi d'une feuille de Mellapak tandis que SP12 signifie un panier suivi de deux feuilles de Mellapak. Comme dans le cas du Katapak-SP12, les billes à l'intérieur des paniers ne sont pas visibles car la résolution spatiale du tomographe est trop faible.

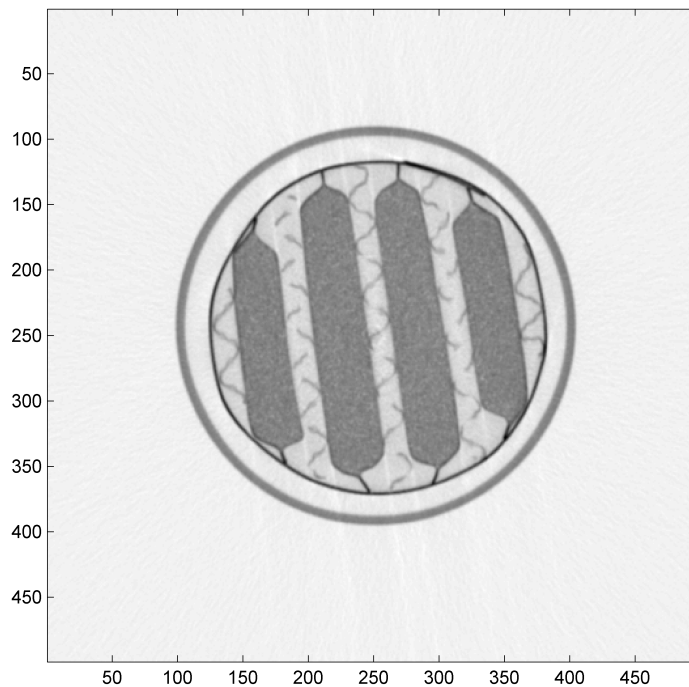


FIGURE 3.3: Image brute en niveaux de gris d'une section droite d'un empilage de Katapak-SP11

3.2 Les différentes opérations de traitement d'images

Ces images vont subir différentes opérations afin d'éliminer le bruit de fond et d'obtenir des images cohérentes et représentatives des différents empilages. Les diverses opérations de traitement d'images peuvent être appliquées aux images relatives aux trois types d'empilage (Mellapak Plus 752 Y, Katapak-SP12 et Katapak-SP11). Pour ces différentes opérations, on ne va montrer que des images du Mellapak Plus 752Y.

Voici l'organigramme reprenant ces opérations :

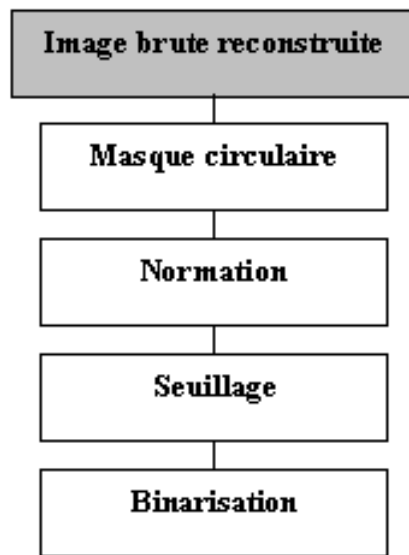


FIGURE 3.4: Organigramme reprenant les différentes opérations du traitement d'images

3.2.1 Application d'un masque sur toutes les images

Seul l'intérieur de la colonne nous intéresse, c'est pourquoi, un masque circulaire, de diamètre similaire à celui de la colonne, est appliqué à toutes les images brutes reconstruites. Le principe de ce masque est de donner des valeurs nulles à tous les pixels formant la paroi de la colonne et également à tous les points situés en dehors de la colonne sur l'image brute. Si on applique ce masque à la Figure 3.1, on obtient la Figure 3.5 suivante :

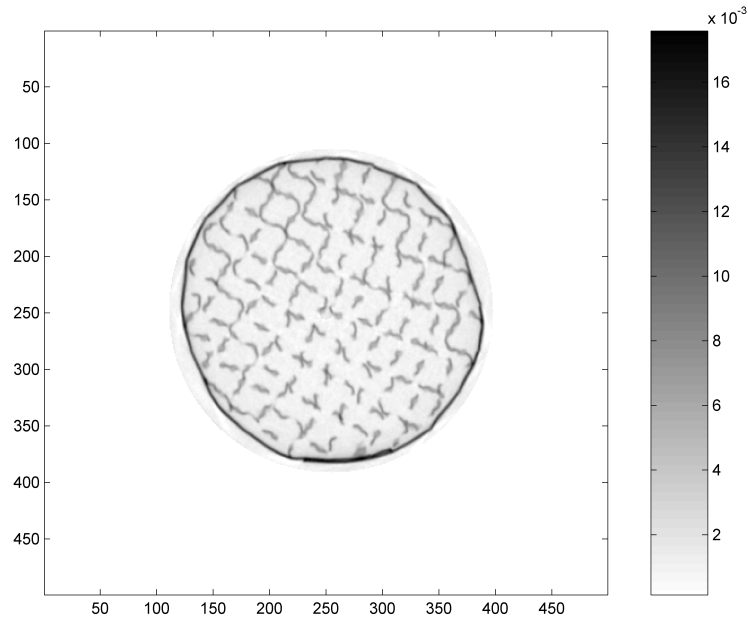


FIGURE 3.5: Image d'une section droite d'un Mellapak Plus 752Y sans la paroi de la colonne

3.2.2 La normation

La normation permet d'exploiter de manière quantitative les images. En effet, elle donne une signification physique aux valeurs des pixels formant cette image, à savoir la densité de l'objet, c'est-à-dire, le pourcentage de solide présent dans chacun de ces pixels. Le facteur de normation a été pris égal à une valeur moyenne du pixel maximum calculé sur différentes images. On obtient ainsi des valeurs comprises entre 0 et 100 % qui correspondent respectivement à un pixel ne contenant pas de solide et à un pixel entièrement rempli de solide. Cela permet par exemple de déterminer la fraction de vide d'un objet. L'image obtenue après normation (Figure 3.6) ne diffère de la précédente (Figure 3.5) que par les valeurs de ses pixels. En effet, la gamme des valeurs des pixels indiquée sur l'échelle de gris est maintenant comprise entre 0 et 1.

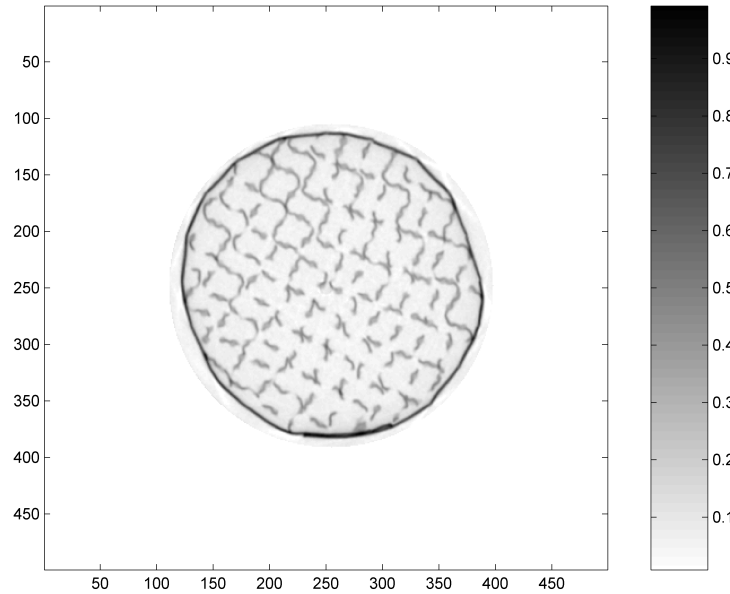


FIGURE 3.6: Image normée d'une section droite de Mellapak Plus 752Y

3.2.3 Le seuillage

Cette opération est très importante car elle permet d'éliminer le bruit de fond, qui peut provenir des fluctuations du détecteur, et des artéfacts produits lors de la reconstruction des images. Le principe consiste à appliquer un seuil, c'est-à-dire, donner la valeur zéro à tous les pixels dont la valeur est inférieure à ce seuil. Cependant, le choix du seuil est assez complexe et dépend fortement des images obtenues (Green, 2006[12]). Le bruit dépend de la densité de l'objet que le faisceau de rayons X doit traverser. Le bruit devient visible dans les zones supposées vide, telle que l'extérieur de la colonne. Pour cette opération, nous partons d'images brutes sans appliquer de masque afin de tenir compte du bruit en dehors de la colonne. Pour chaque type d'empilage, la valeur maximale d'atténuation des rayons X à l'extérieur de la colonne a été déterminée pour différentes sections droites du lit d'empilage. Une valeur moyenne de toutes ces valeurs a été calculée. La Figure 3.7 montre le bruit mesuré à l'extérieur de la colonne pour les trois empilages structurés secs.

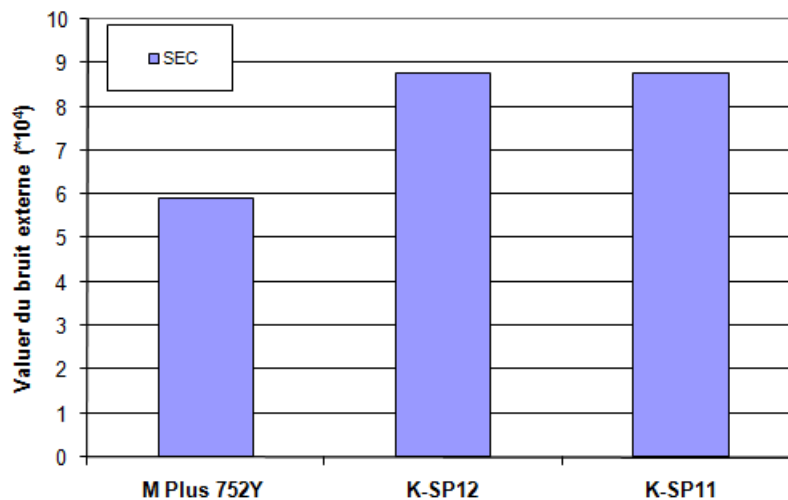


FIGURE 3.7: Valeurs moyenne du bruit à l'extérieur de la colonne sur 45 sections droites pour différents empilages

On observe clairement que le bruit dépend de la densité de l'objet scanné. La densité du Mellapak Plus 752Y est considérablement plus basse que celle du Katapak-SP11 et Katapak-SP12, ce qui peut expliquer les valeurs plus basse du bruit sur les images du Mellapak Plus 752Y. Tandis que le Katapak-SP11 et le Katapak-SP12 sont caractérisés par des valeurs de bruit externe similaires. Cela peut s'expliquer par le nombre de couches métalliques que le faisceau de rayons X doit traverser :

- Dans le Katapak-SP12 : il y a 6 feuilles de treillis métalliques (2 pour chaque paniers catalytiques) et 8 feuilles de Mellapak Plus 752Y. Donc, au total, cela représente 14 couches métalliques ;

- Dans le Katapak-SP11 : il y a 8 feuilles de treillis métalliques (2 pour chaque paniers catalytiques) et 5 feuilles de Mellapak Plus 752Y, ce qui représente au total 13 couches métalliques.

De plus, il faut ajouter les effets des billes de verre présents dans les paniers catalytiques, lesquels sont plus important dans le cas du Katapak-SP11. Toutes ces contributions conduisent à avoir des valeurs de bruit similaires pour ces deux types d'empilage.

Dans ce travail, deux méthodes de seuillage ont été adoptées. Il s'agit de la méthode automatique d'Otsu, proposée par défaut dans l'Image Processing Toolbox (4.2) de la version 7.0 de Matlab et d'une méthode manuelle.

La première méthode est basée sur l'analyse de la factorielle discriminante. Cette méthode est telle que les classes de niveaux de gris sont séparées le plus possible et que les classes sont regroupées autour de leur centre. Il en résulte une maximisation de la variance interclasse et une minimisation de la variance intraclasse. La Figure 3.8 montre que cette méthode convient assez bien aux images d'empilage sec. En effet, on observe que le bruit à l'extérieur et à l'intérieur de la colonne a été éliminé.

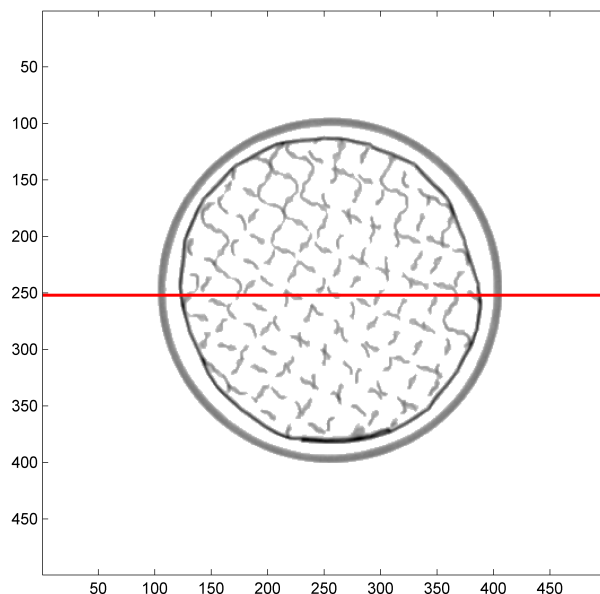


FIGURE 3.8: Image d'une section droite de Mellapak Plus 752Y après application du seuillage par la méthode d'Otsu

Pour mieux visualiser l'effet du seuillage, on va regarder le profil de valeurs de fractions de solide d'une ligne de l'image avant et après seuillage (ligne rouge sur la Figure 3.8). On obtient ainsi la Figure 3.9. On observe les différents pics correspondant à la paroi de la colonne, au wall wiper et aux feuilles de l'empilage. De plus, sur le profil d'une ligne de l'image brute (Figure 3.9a), on constate la présence de bruit à l'extérieur de la colonne et entre les feuilles de Mellapak. En effet, ces pixels correspondant à du vide devraient être nuls. Ce bruit est dû aux variations abruptes de densité présentes dans la section droite étudiée. Il faut noter que lors de la reconstruction des images brutes, un filtrage par une fenêtre de Hamming et l'algorithme de rétro-projection filtrée ont été utilisés afin de réduire ce phénomène. Or ce dernier est encore présent. Tandis qu'après avoir effectué l'opération de seuillage sur l'image brute, on observe que les différents pics correspondant au solide sont bien distincts entre eux, et que le bruit à l'extérieur de la colonne et entre les feuilles de Mellapak a bien été éliminé (Figure 3.9b).

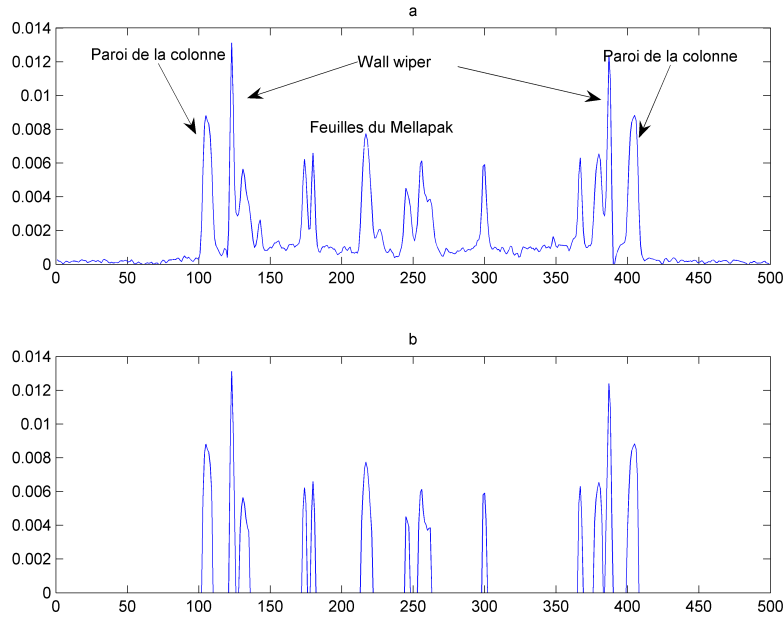
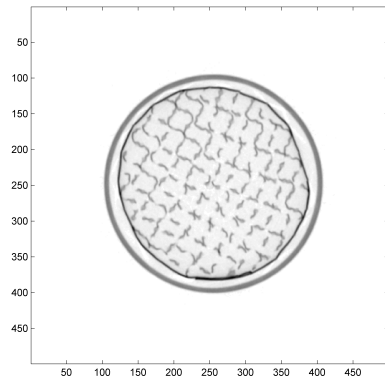


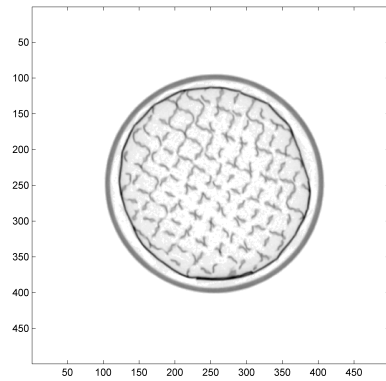
FIGURE 3.9: Profil des coefficients d'atténuation d'une ligne d'une image brute (a) et d'une image seuillée par la méthode d'Otsu (b) d'un Mellapak Plus 752Y

La méthode manuelle consiste à déterminer la valeur du seuil de manière subjective dans le but d'obtenir l'image la plus « belle » possible. Elle dépend fortement de la personne qui l'applique. Elle consiste simplement à augmenter progressivement la valeur du seuil jusqu'à obtenir une image sans bruit de fond. Le risque de cette méthode est d'effectuer un seuillage trop sévère, ce qui pourrait conduire à éliminer des pixels contenant réellement du solide et donc de perdre une partie de l'information contenue dans l'image (Figure 3.10).

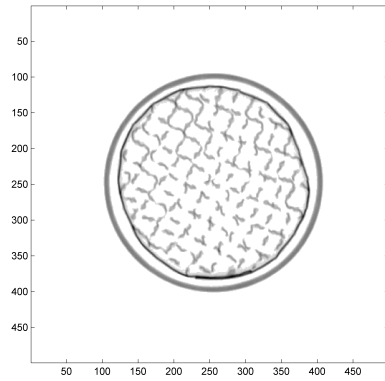
Une autre approche serait d'évaluer le niveau de bruit à partir des valeurs de pixels situés en dehors de la section droite de la colonne sur les images reconstruites. La Figure 3.11 a été obtenue à partir de l'image brute (Figure 3.1) dans laquelle on a enlevé le solide afin d'observer uniquement la zone en dehors de la colonne. Les pixels de cette région devraient avoir théoriquement des valeurs de coefficient d'atténuation nulles, puisque ces pixels correspondent à des points ne contenant pas de solide. Ces valeurs positives ne peuvent être dues qu'à un bruit de fond. La valeur du seuil correspond à la valeur du pixel maximum dans cette zone afin de pouvoir éliminer la totalité de ce bruit de fond. Ce seuil est appliqué sur l'image brute (Figure 3.1) et on obtient ainsi la Figure 3.12. Sur cette dernière figure, on constate que le bruit en dehors de la colonne a été éliminé mais que le bruit entre les feuilles de Mellapak reste encore présent. Afin de mieux visualiser l'effet de ce type de seuillage sur l'image bruitée, la Figure 3.13 représente les profils d'atténuation d'une ligne de l'image brute de la Figure 3.1 et de l'image seuillée de la Figure 3.12. On observe bien que le bruit n'est plus présent à l'extérieur de la colonne. Cependant, comparé au profil obtenu dans le cas du seuillage par la méthode d'Otsu (Figure 3.9), les pics à l'intérieur de la colonne ne sont pas distincts entre eux, ce qui signifie qu'il reste encore du bruit. La Figure 3.14 montre les différents seuils fournis par cette méthode et celle d'Otsu. On constate que le seuil obtenu (0.0034) par la méthode d'Otsu est plus élevé que celui de la méthode basée sur le bruit externe (0.0006). En effet, cette dernière méthode se concentre que sur le bruit externe tandis que la méthode d'Otsu tient compte de toute la section dans la détermination du seuil. On peut donc dire de manière qualitative que dans le cas des images d'empilage sec, la méthode d'Otsu enlève plus de bruit que la méthode de seuillage se basant sur les zones en dehors du lit d'empilages. Pour pouvoir justifier le choix de l'une ou l'autre méthode, il faudrait se baser sur une grandeur de référence, comme la porosité par exemple. Cela sera traité dans la section suivante.



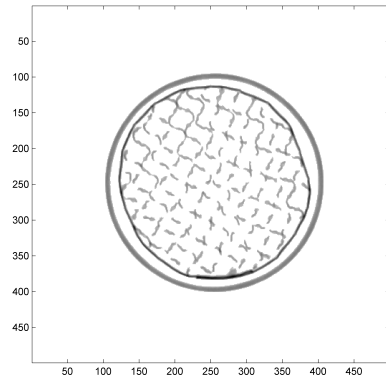
Seuil : 0.0005



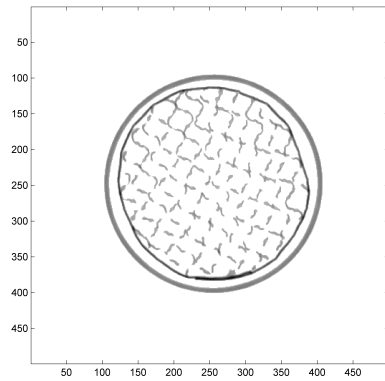
Seuil : 0.001



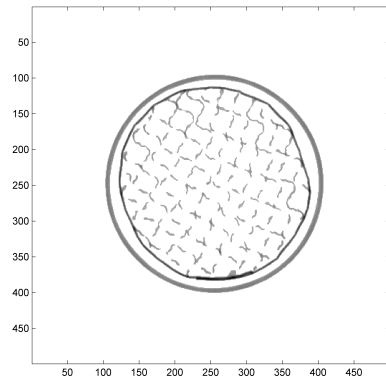
Seuil : 0.002



Seuil : 0.0035



Seuil : 0.004



Seuil : 0.005

FIGURE 3.10: Seuillage progressif d'une image d'une section droite d'un Mellapak Plus 752Y

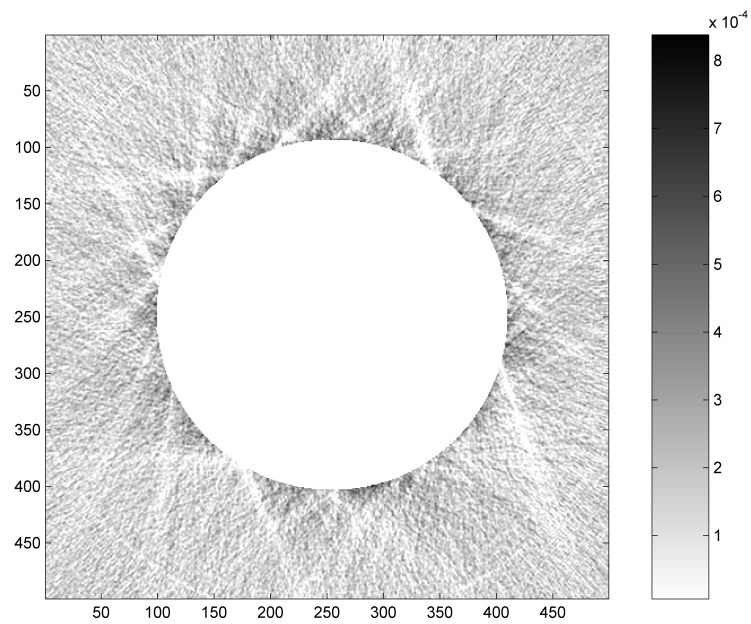


FIGURE 3.11: Image brute d'une section droite de la colonne contenant des éléments de Mellapak Plus 752Y dans laquelle on a enlevé le solide

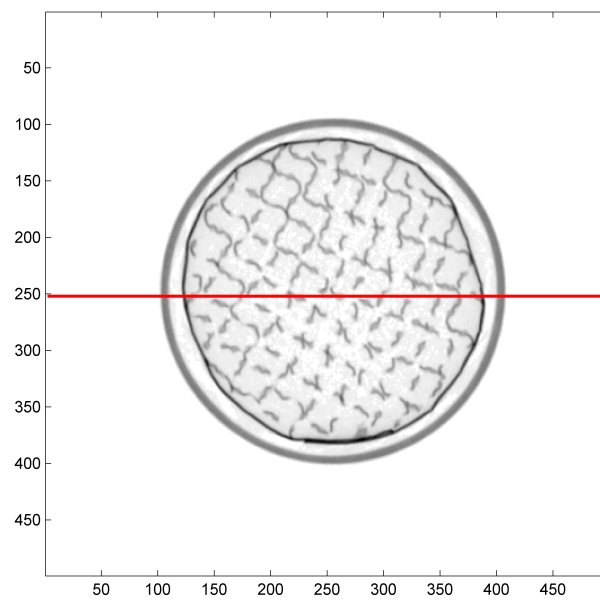


FIGURE 3.12: Image d'une section droite de Mellapak Plus 752Y seuillée par méthode manuelle

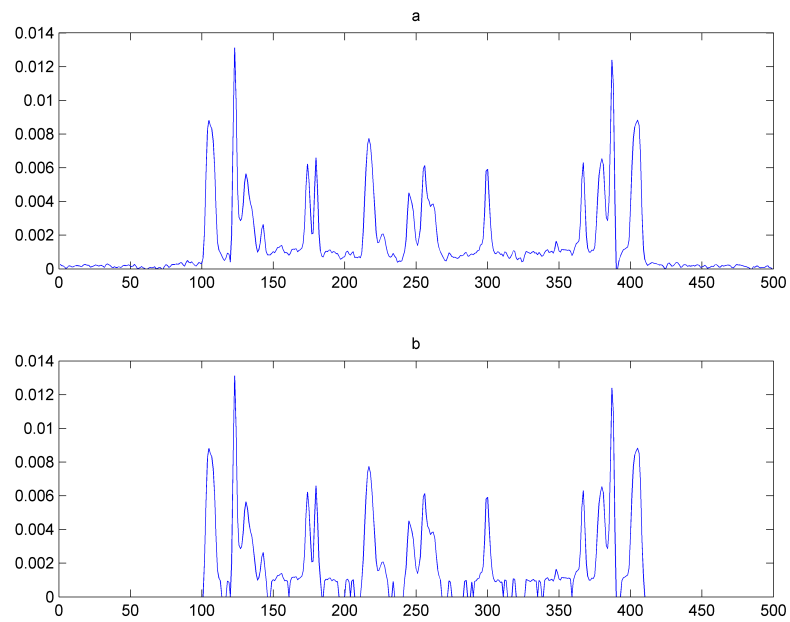


FIGURE 3.13: Profil des coefficients d'atténuation d'une ligne d'une image brute (a) et d'une image seuillée par la méthode manuelle d'une section droite de Mellapak Plus 752Y

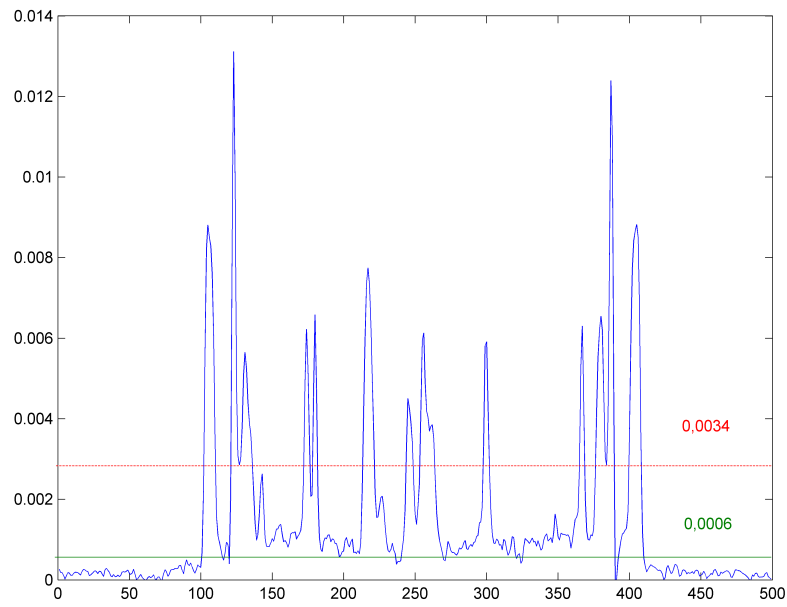


FIGURE 3.14: Profil des coefficients d'atténuation d'une ligne d'une section droite du Mellapak Plus 752Y avec les deux seuils obtenus à partir des deux méthodes de seuillage étudiées dans ce travail

3.2.4 Binarisation

Cette opération va permettre de discerner facilement les plus petits détails sur l'image reconstruite. Tous les pixels de valeurs supérieures au seuil prennent la valeur 100 % tandis que les autres acquièrent la valeur de 0 %.

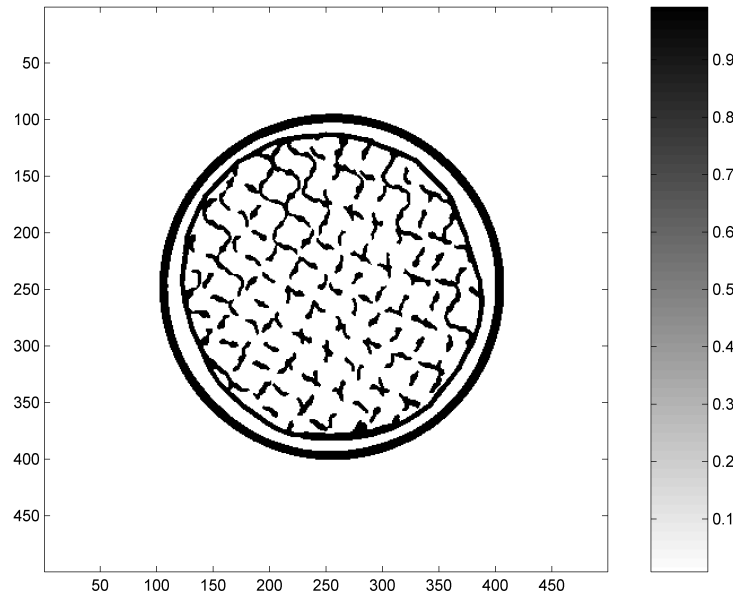


FIGURE 3.15: Image binarisée d'une section droite de Mellapak Plus 752Y

Tous les calculs qui vont suivre sont effectués sur des images en niveau de gris et non sur des images binaires, la binarisation entraîne une perte considérable d'information en raison d'une grande simplification des valeurs des pixels. La multiplication, point par point, de l'image brute et de l'image binarisée après seuillage permet d'obtenir une image en niveau de gris dont on a éliminé le bruit de fond.

3.3 Fraction de vide des différents empilages

Nous allons déterminer la fraction de vide des trois types d'empilages à partir des images de sections droites obtenues par tomographie à rayons X. Ces images ont d'abord subi les différents traitements décrits dans la section précédente afin d'éliminer le maximum de bruit. Le choix du seuillage s'est porté sur la méthode d'Otsu, car la méthode manuelle n'arrive pas à éliminer le bruit de fond à l'intérieur de la colonne, ce qui conduit à fausser les valeurs de la fraction de vide. Ces valeurs pourront être comparées avec celles trouvées dans la littérature. Götze et al (2001)[11], Behrens (2006)[2] fournissent quelques données géométriques (fraction de vide, surface spécifique,...) sur des empilages modulaires de 0.25 à 0.45 m de diamètre. Tandis que Ratheesh et kannan (2004)[24], Brunazzi et Viva(2006)[9] ont étudié ces types d'empilages pour un diamètre de 0.1 m. Ces derniers se sont concentrés sur la détermination expérimentale de la fraction de vide de ces empilages structurés et modulaires. Leur méthodologie consiste simplement à mesurer la différence de volume de liquide avant et après immersion de l'empilage dans un récipient complètement rempli de liquide. La différence de volume correspond au volume occupé par le solide de l'empilage et à partir de ce dernier, on peut déterminer la fraction de vide de ces empilages. Ces résultats pourront être comparés avec ceux obtenus par tomographie à rayons X et ainsi valider cette technique pour la détermination des caractéristiques géométriques des empilages structurés et modulaires.

3.3.1 Mellapak Plus 752Y

Des mesures tomographiques ont été réalisées sur 70 sections droites de la colonne sèche contenant 4 éléments de Mellapak Plus 752Y. Ces images ont tout d'abord été traitées afin d'éliminer le bruit de fond et la paroi de la colonne. De plus, ces images ont été normalisées afin d'avoir des valeurs de pixels comprises entre 0 et 1 (Figure 3.16a). Ensuite, il suffit simplement de sommer les valeurs des pixels formant le solide et diviser cette somme par la surface de la section droite de l'empilage pour obtenir la fraction de solide de l'empilage. À partir de cette dernière, on peut donc déterminer la fraction de vide de l'empilage.

La Figure 3.16c représente un zoom d'une partie de la Figure 3.16a. On constate que l'épaisseur des feuilles ondulées est plus grande que l'épaisseur réelle des feuilles de Mellapak Plus 752Y. En effet, la vraie valeur est de 0.2 mm, alors que sur les images, on obtient une épaisseur de 2 à 3 pixels (pixel=0.36 mm). Ce phénomène d'épaississement est dû à une limitation du tomographe qui n'arrive pas à faire une distinction nette entre deux phases (ici, le solide et le vide). Cependant, on peut quand même réduire cet effet, en prenant le squelette du solide, c'est-à-dire, que l'on réduit l'épaisseur des feuilles sur les images à la taille du pixel (0.36 mm) (Figures 3.16b et d).

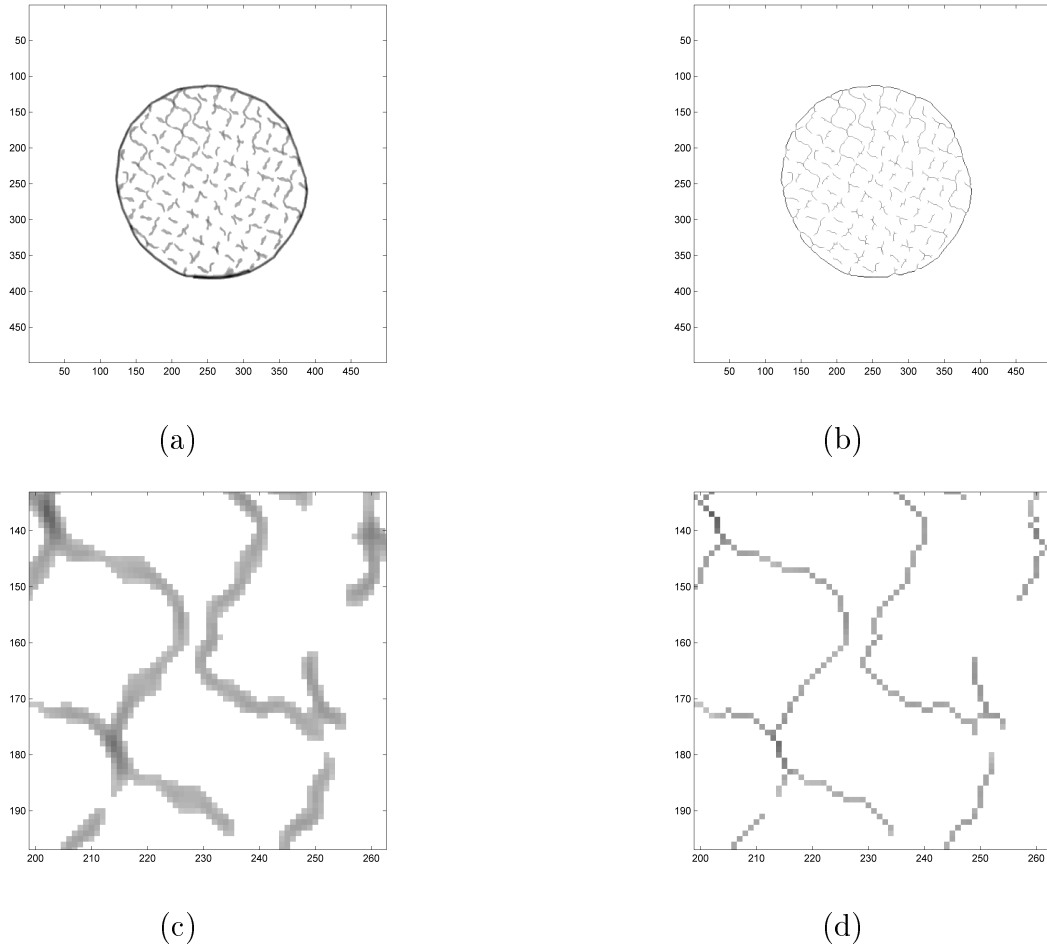


FIGURE 3.16: (a) : Image en niveaux de gris d'une section droite sans utilisation du squelette ; (b) : Image en niveaux de gris d'une section droite avec utilisation du squelette ; (c) : zoom d'une partie de l'image (a) ; (d) : zoom d'une partie de l'image (b)

De plus, l'étape de binarisation ne convient pas dans la détermination de la fraction de vide de l'empilage, il vaut mieux travailler sur les images en niveaux de gris. En effet, les pixels des images binarisées ne présentent que deux valeurs possible : 0 ou 1. Dans ce cas, même si on prend le squelette, on va sur-estimer l'épaisseur des feuilles (0.36 mm au lieu de 0.2 mm) et la fraction de vide calculée sera sous-estimée. Tandis que dans le cas d'une image en niveaux de gris, le pixel du squelette possède une valeur comprise entre 0 et 1, ce qui signifie que ce pixel contient un pourcentage de solide et un pourcentage de vide. Et donc, on ne sur-estime pas l'épaisseur. La Figure 3.17 représente les valeurs de fraction de vide de différentes sections droites de la colonne obtenues à partir des différents types d'images (binarisées, en niveaux de gris). Tout d'abord, pour chaque cas, on observe que les valeurs de fraction de vide fluctuent d'une section droite à une autre. En effet, les

sections droites sont différentes entre elles par la présence ou non de trous et du wall wiper. En comparant avec la valeur fournie par le fabricant (0.975), on constate que les valeurs déterminées à partir de ces images binarisées ou en niveaux de gris sans utiliser leur squelette sont plus faibles. L'utilisation du squelette sur les images binarisées ou en niveaux de gris permet de se rapprocher de la valeur fournie par le fabricant. Cependant, travailler en niveaux de gris fournit des meilleures valeurs que dans le cas des images binarisées. Les petites différences peuvent provenir de la présence du wall wiper (WW). Car il semblerait que la valeur de 0.975 ne tiennent pas compte de la présence du wall wiper, ce qui peut se justifier dans le cas de colonnes de grand diamètre, mais pas dans notre cas puisque le diamètre est très petit (0.1 m).

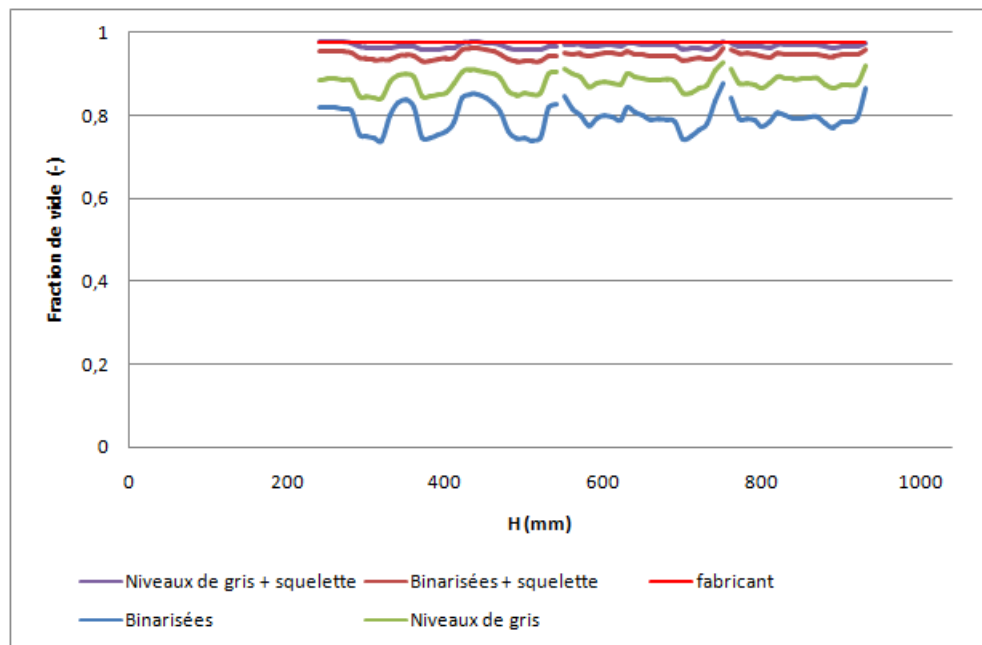


FIGURE 3.17: Fraction de vide pour différentes sections droites du Mellapak Plus 752Y

Le tableau 3.1 reprend les valeurs moyennes calculées à partir des images en niveaux de gris et binarisées pour 70 sections droites dans les différents cas (avec et sans squelette), ainsi que la valeur fournie par le fabricant. On constate bien que l'utilisation du squelette est nécessaire dans la détermination de la fraction de vide du Mellapak Plus 752Y. De plus, on constate que lorsqu'on ne tient pas compte du wall wiper (WW), la valeur moyenne de la fraction de vide se rapproche de la valeur annoncée par le fabricant.

	Sans squelette		Avec squelette		Fabricant
Images bianrisées	WW	Pas de WW	WW	Pas de WW	0.975
	0.794	0.814	0.945	0.948	
Images en niveaux de gris	WW	Pas de WW	WW	Pas de WW	
	0.880	0.892	0.968	0.972	

Tableau 3.1: Fraction de vide du Mellapak Plus 752 Y

3.3.2 Katapak-SP12

La détermination de la fraction de vide (ε) à partir des images de l'empilage sec se fait en deux étapes. La première étape concerne uniquement la zone de distillation et consiste à mesurer la surface occupée par les feuilles de Mellapak (S_{Mell}) qui composent le Katapak-SP12. Comme nous l'avons montré dans la section précédente, l'utilisation du squelette en niveaux de gris dans les images permet de réduire les erreurs dues à la résolution spatiale limitée du tomographe. La seconde étape concerne la zone de réaction. Un masque a été appliqué sur les images afin de ne tenir compte que des paniers catalytiques du Katapak-SP12 (Figure 3.18).

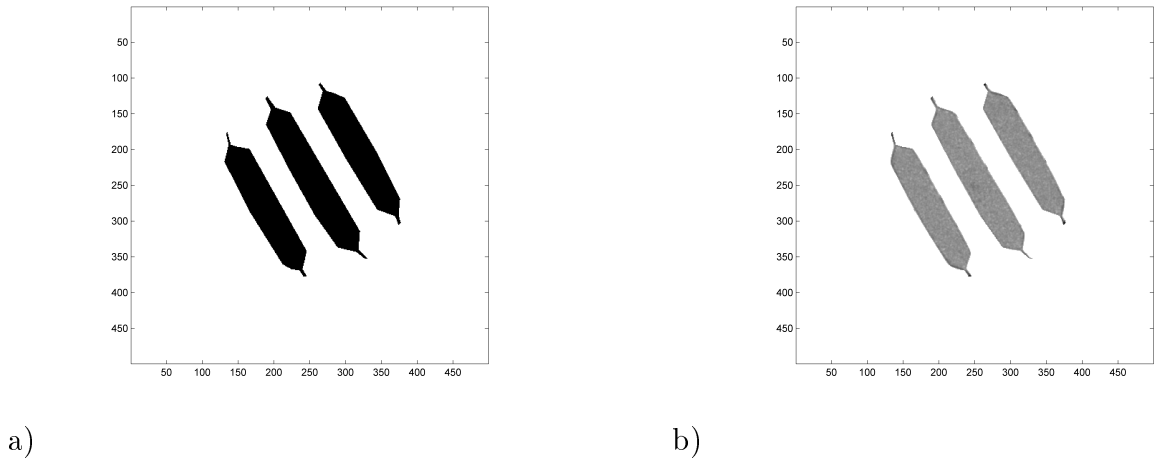


FIGURE 3.18: a) Masques des paniers du Katapak-SP12 ; b) Image en niveaux de gris des paniers du Katapak-SP12

La résolution du tomographe n'étant pas suffisante pour distinguer les billes présentes dans les paniers de Katapak-SP12, la fraction de solide relative aux paniers a dû être évaluée d'une autre manière. Nous avons tout d'abord déterminé la surface totale occupée par les paniers en leur appliquant un masque comme illustré sur la Figure 3.18a. A partir de ces masques, la surface occupée par les paniers pleins a été déterminée ($S_{\text{pan,plein}}$). Pour évaluer la valeur réelle de la surface de solide des paniers, la porosité au sein des paniers est

nécessaire. Celle-ci a été déterminée expérimentalement par Brunazzi et Viva (2006)[9], et est égale à 0.385. Cette valeur peut être utilisée dans la relation suivante qui permet ainsi de déterminer la surface occupée par le solide dans une section de Katapak-SP12 :

$$S_{solide,tot} = S_{Mell} + S_{pan,plein} * (1 - 0.385) \quad (3.1)$$

Afin d'obtenir la fraction de solide de cet empilage, cette surface $S_{solide,tot}$ est ensuite divisée par la surface d'une section droite du lit d'empilage, $S_{section}$. La relation suivante donne la fraction de vide (ε) du Katapak-SP12 :

$$\varepsilon = 1 - \left(\frac{S_{solide,tot}}{S_{section}} \right) \quad (3.2)$$

Cette relation est utilisée pour 80 sections droites du lit contenant 4 éléments de Katapak-SP12 et l'on obtient ainsi la Figure 3.19. On observe une fluctuation d'une section à une autre, ce qui s'explique par le fait que toutes les sections sont différentes entre elles par la présence ou non du wall wiper ou de trous dans les feuilles d'empilage structuré. Les valeurs supérieures à 0.9 correspondent à des sections droites situées aux jonctions entre deux empilages car à cet endroit, la surface des paniers est quasi-nulle (Figure 3.20).

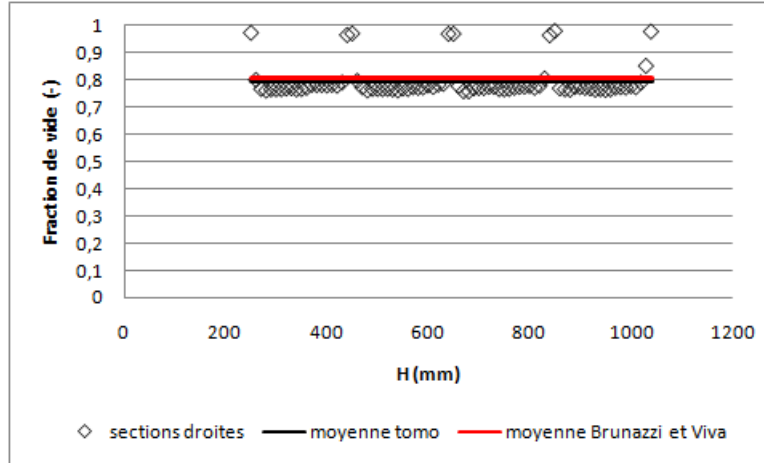


FIGURE 3.19: Fraction de vide pour différentes sections droites du lit de Katapak-SP12

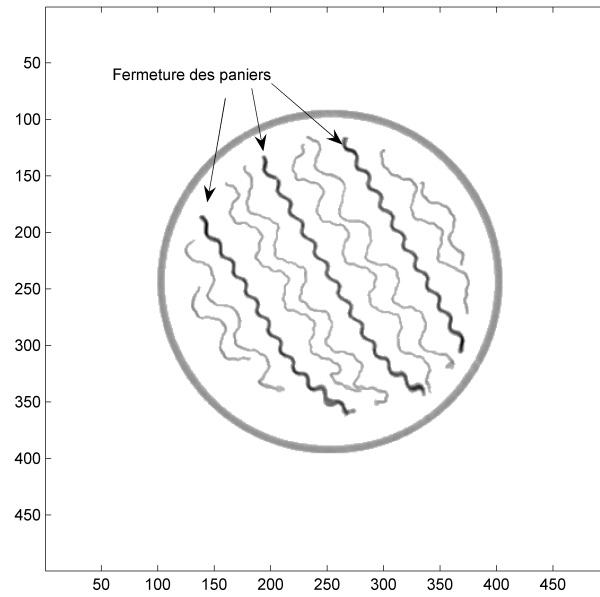


FIGURE 3.20: Section droite en bas d'un élément de Katapak-SP12 montrant la fermeture des paniers de cet élément

Le tableau 3.2 qui compare les valeurs de porosité du Katapak-SP12 obtenues par tomographie à rayons X et celle calculée par Brunazzi et Viva (2006)[9] montre que l'accord est très bon.

Tomographie à rayons X	Brunazzi et Viva
0.795	0.806

Tableau 3.2: Comparaison des valeurs de porosité du Katapak-SP12 obtenues par tomographie à rayons X et celle annoncée par Brunazzi et Viva (2006)[9].

3.3.3 Katapak-SP11

La détermination de la fraction de vide du Katapak-SP11 s'effectue de la même manière que dans le cas du Katapak-SP12. En effet, ces deux empilages modulaires sont presque similaires, ils ne se différencient que par le nombre de paniers et le nombre de feuilles de Mellapak entre ces paniers.

La Figure 3.21 représente la fraction de vide pour 80 sections situées à différentes hauteurs du lit composé de 4 éléments de Katapak-SP11. Comme dans le cas du Katapak-SP12, on constate également une fluctuation en fonction de la hauteur.

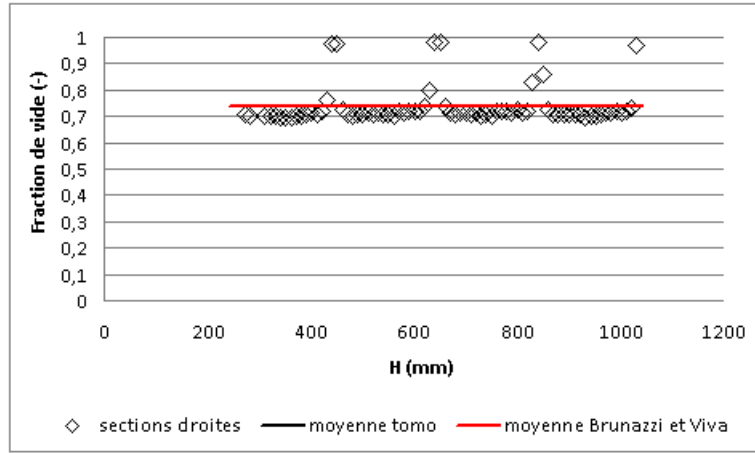


FIGURE 3.21: Fraction de vide pour différentes sections droites du lit de Katapak-SP11

Le tableau 3.3 qui compare les valeurs de porosité obtenues par tomographie et celle annoncée par Brunazzi et Viva, montre que l'accord est très bon.

Tomographie à rayons X	Brunazzi et Viva
0.737	0.738

Tableau 3.3: Comparaison des valeurs de porosité du Katapak-SP11 obtenues par tomographie à rayons X et celle annoncée par Brunazzi et Viva (2006)[9]

3.4 Surface spécifique des différents empilages

La mesure de la surface spécifique d'un empilage est très importante, car elle joue un rôle primordial sur l'aire interfaciale qui va se développer entre les phases (gaz-liquide) en écoulement au sein du lit d'empilage.

Dans cette section, nous allons déterminer la surface spécifique dans différents empilages étudiés sur base des images de leurs sections droites obtenues par tomographie à rayons X. Un programme sous Matlab a été écrit afin de déterminer cette surface spécifique. Ces valeurs pourront être comparées à celles calculées expérimentalement par Brunazzi et Viva[9], qui ont simplement démonté l'empilage, c'est-à-dire qu'ils ont séparer les différents éléments qui composent l'empilage (feuilles, paniers, wall wiper) et ils ont mesuré leur surface.

3.4.1 Méthodologie

Le calcul repose sur l'analyse d'une image binarisée de la section droite de l'empilage sans la paroi de la colonne (Figure 3.22) et sur les étapes de calcul suivantes :

- On part de chaque pixel égal à l'unité (solide) et on regarde ses 4 voisins : si l'un d'eux a une valeur nulle (gaz), ce pixel de solide est en contact avec le gaz et appartient donc à l'interface gaz-solide.
- On réalise cette étape pour chaque pixel de solide de l'image binaire afin de déterminer le nombre de "faces" du pixel de solide en contact avec du gaz.
- L'aire interfaciale gaz-solide est obtenue par le produit de ce nombre de faces de pixel et de la dimension du côté du pixel, divisé par la surface de la section droite de la colonne.

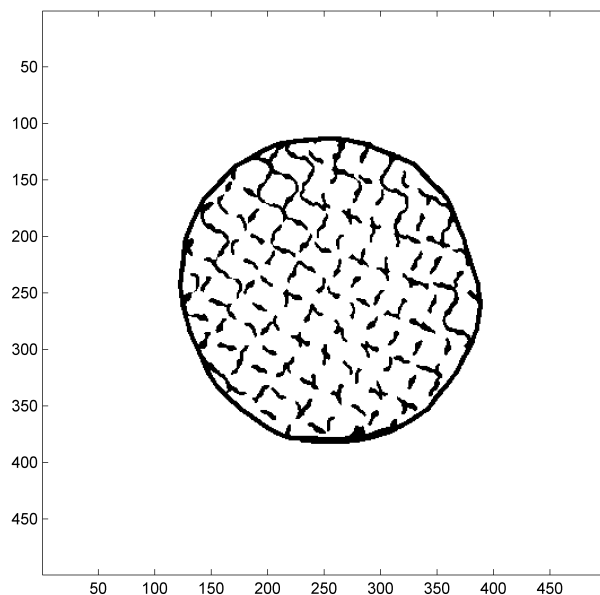


FIGURE 3.22: Image binarisée d'une section droite d'un élément de Mellapak Plus 752Y en l'absence de la paroi de la colonne.

3.4.2 Mellapak Plus 752Y

La méthode décrite ci-dessus a été validée en l'appliquant pour la détermination de la surface spécifique d'un élément d'empilage structuré, dont les caractéristiques géométriques sont connues : le Mellapak Plus 752Y fourni par Sulzer Chemtech. La surface spécifique a été calculée à partir des images 2D de l'élément d'empilage sec obtenues par tomographie. La valeur obtenue de la surface spécifique a été ensuite comparée à celle annoncée par le fabricant. La Figure 3.23 représente l'évolution de cette surface spécifique calculée en fonction de la hauteur de l'empilage. Elle fluctue entre 330 et 520 m^{-1} avec une moyenne calculée sur 18 images appartenant à un même élément d'empilage, qui vaut environ 424 m^{-1} .

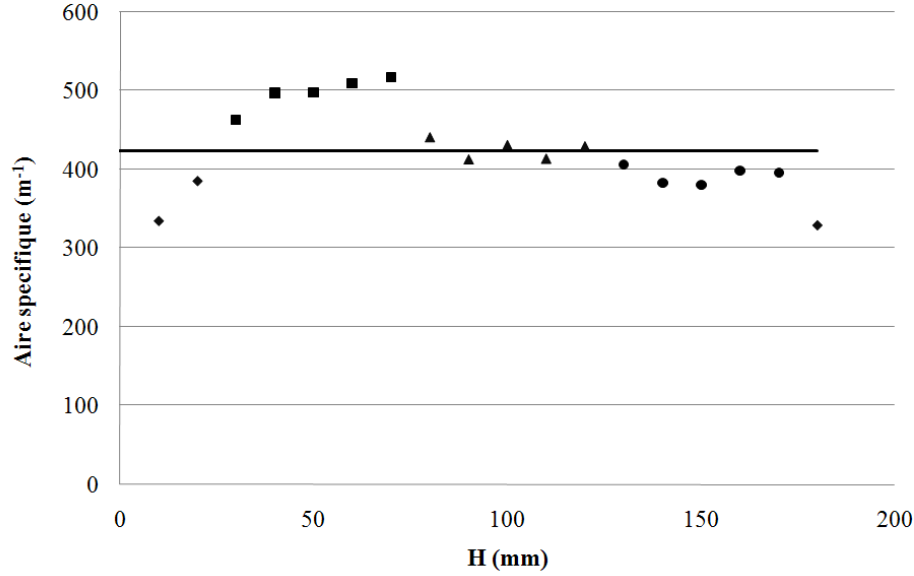


FIGURE 3.23: Evolution de l'aire spécifique du Mellapak Plus 752Y en fonction de la hauteur de l'élément d'empilage

Cette valeur est significativement plus faible que la valeur fournie par le fabricant, 510 m^{-1} basée sur les dimensions géométriques de l'élément d'empilage (Behrens, 2006 [3]) :

$$a_{SP} = 4 \frac{s}{bh} = 510 \text{ m}^{-1} \quad (3.3)$$

où b (longueur de la base des ondulations) = 0.00985 m , s (longueur du côté des ondulations) = 0.00815 m et h (hauteur des ondulations) = 0.0065 m . Dans cette formule, ni les perforations dans les feuilles ondulées, ni la surface du wall wiper ne sont prises en compte dans le calcul de la surface spécifique de l'élément d'empilage.

La différence entre la valeur calculée et celle du fabricant sont donc dues à :

- la contribution (positive) du wall wiper (carré sur la Figure 3.23)
- la contribution (négative) des trous dans les feuilles ondulées (losange sur la Figure 3.23)

La Figure 3.24 illustre une image d'une section droite utilisée pour calculer la surface spécifique du Mellapak Plus 752Y. Sur cette figure, on peut voir clairement les perforations dans les feuilles ondulées et le wall wiper, mais aussi l'espace vide entre l'empilage et la paroi de la colonne.

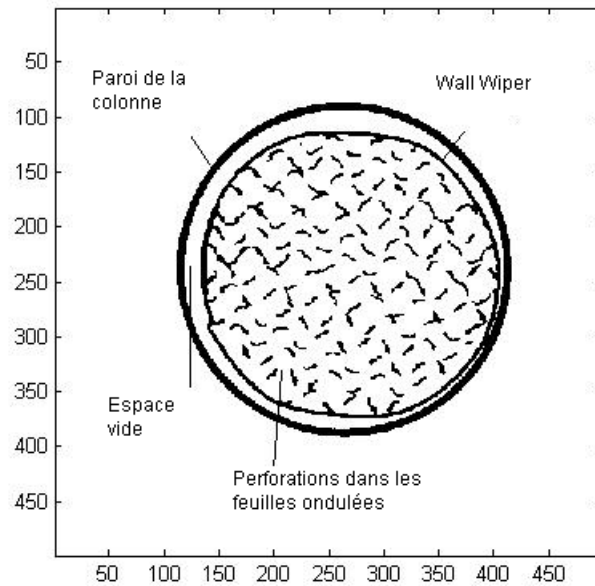


FIGURE 3.24: Image binarisée d'une section droite du Mellapak Plus 752Y. Visualisation des trous, du wall wiper et de l'espace entre l'empilage et la paroi de la colonne

Il faut noter que dans le cas de colonnes avec un petit diamètre, similaires à la colonne utilisée dans ce travail, l'aire correspondant à l'espace entre l'empilage et la paroi de la colonne n'est pas négligeable. En effet, l'empilage n'occupe que 85 % de la surface de la section droite comme on peut le voir sur la Figure 3.25 (cercle rouge).

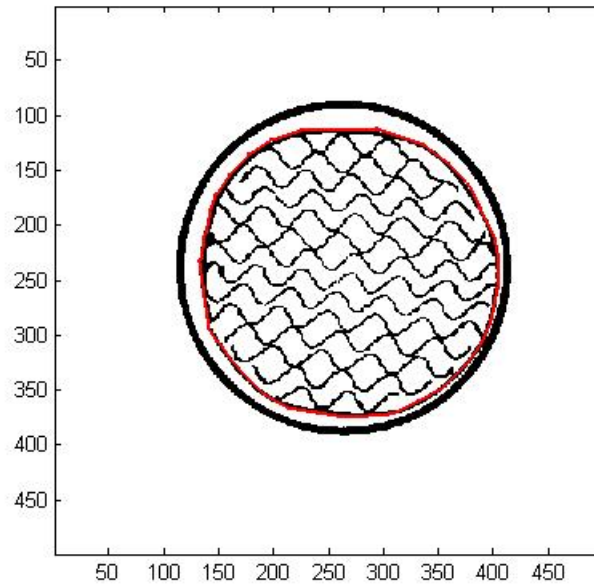


FIGURE 3.25: Image binarisée d'une section droite du Mellapak Plus 752Y. Cercle rouge délimitant la section droite de l'empilage

Donc, même dans des sections droites sans wall wiper et sans trous, les valeurs de la surface spécifique calculées sont comprises entre 420 et 440 m^{-1} (triangle noir dans la Figure 3.23), lesquelles sont significativement plus faibles que la valeur annoncée par le fabricant.

Une valeur plus précise de la surface spécifique de cet élément d'empilage pourrait être déterminée à partir de ses caractéristiques géométriques telles que :

- la présence des trous représentant 10 % de l'aire de la surface des feuilles ;
- la surface du wall wiper représentant 9% de la surface des feuilles perforées pour un élément d'empilage de 0.10 m de diamètre et de 0.20 m de hauteur ;
- l'espace entre l'empilage et la paroi de la colonne représentant 15% de la surface de la section droite de la colonne

On obtient ainsi une valeur "géométrique" de la surface spécifique égale à :

$$510(1 - 0.10)(1 + 0.09)(1 - 0.15) = 425 \text{ m}^{-1} \quad (3.4)$$

Cette valeur est proche de la valeur moyenne calculée à partir des images de section droite de l'empilage obtenues par tomographie et qui vaut 424 m^{-1} .

La méthode de calcul de l'aire spécifique basée sur les images obtenues par tomographie à rayons X a donc été validée. La procédure de validation a montré que les détails géométriques tels que les perforations dans les feuilles et le wall wiper doivent être considérés si on veut obtenir une estimation plus précise de l'aire spécifique de l'élément d'empilage. Dans le cas de colonnes avec un grand diamètre, les contributions du wall wiper et de l'espace entre l'empilage et la paroi de la colonne pourraient être négligeables, mais pas celle des perforations dans les feuilles de l'empilage qui représentent 10% de la surface spécifique de l'empilage.

La Figure 3.23 montre que la tomographie à rayons X donne accès non seulement à la valeur globale de la surface spécifique, mais aussi à son profil axial. Les fluctuations autour de la moyenne s'élèvent jusqu'à 22 % en relatif, ce qui pourrait avoir une influence significative sur la distribution du gaz et du liquide dans le lit d'empilage.

3.4.3 Katapak SP12

La méthode proposée pour calculer la surface spécifique a été appliquée sur les images de l'élément de Katapak SP12. L'aire spécifique de cet empilage, a_{SP} pourra être utilisée pour normaliser les valeurs d'aire interfaciale gaz-liquide, a_{GL} . Le rapport a_{GL}/a_{SP} est souvent utilisé dans les corrélations présentes dans la littérature (Billet et Schultes, 1993[5] ; Onda et al., 1968[22] ; Rocha et al., 1996[25] ; Shi et Mersmann, 1985[29]). En raison de la structure modulaire de l'élément d'empilage (Figure 2.5, chapitre 4 : Dispositif expérimental), la surface spécifique du Katapak SP12 est généralement évaluée comme la somme des contributions relatives aux paniers catalytiques et aux feuilles ondulées (Behrens, 2006[2]). La contribution effective des paniers catalytiques à la surface spécifique de l'empilage est limitée à sa surface externe, car dans le cas d'un écoulement à contre-courant gaz-liquide au dessus du point de charge des paniers catalytiques, les paniers sont complètement remplis d'eau. Donc, la porosité interne des paniers (espace entre les billes) ne contribue pas au contact gaz-liquide. La Figure 3.26 illustre une image d'une section droite de cet élément d'empilage. Les contributions de la surface externe des paniers catalytiques et des feuilles ondulées sont représentées respectivement en rouge et en vert. La porosité interne des paniers est masquée (en noir).

La Figure 3.27 montre les contributions de la surface externe des paniers catalytiques (croix) et des feuilles ondulées (carré) pour différentes sections droites du lit d'empilage. La surface spécifique des paniers reste constante et vaut environ 105 m^{-1} . La surface spécifique des feuilles ondulées varie en fonction de la position verticale de la section droite. En effet, le nombre de trous varie d'une section à une autre et le wall wiper n'est présent que dans certaines sections droites. Si on somme les contributions des paniers et des feuilles ondulées, on obtient une valeur de 354 m^{-1} dans les régions où il n'y ni perforations et ni wall wiper (hauteur comprise entre 120 et 150 mm). Cette valeur est en accord avec celle donnée par Behrens, qui vaut 341 m^{-1} pour un élément d'empilage similaire. Behrens[2] a obtenu cette valeur en mesurant la surface externe des paniers et

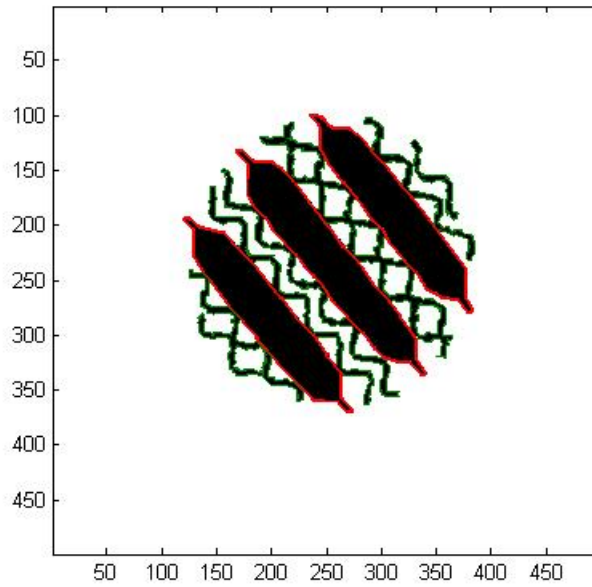


FIGURE 3.26: Image d'une section droite du Katapak SP12. Visualisation de la surface externe des paniers en rouge et de la surface des feuilles ondulées en vert

la surface des feuilles ondulées non perforées sur un élément d'empilage démonté.

Ces différences, comprises entre 30 et 50 m^{-1} , dépendent de la section droite et représentent approximativement 10 % de la surface spécifique totale de l'empilage. Elles peuvent être attribuées aux zones de contact entre les paniers et les feuilles ondulées, lesquelles limitent l'aire interfaciale entre le gaz et le solide. L'influence des points de contact sur l'aire spécifique de l'empilage est sur-estimée car la résolution spatiale du tomographe est limitée par la taille du pixel (0.36 mm). Cependant, la validation de la méthode obtenue à partir du Mellapak Plus 752Y nous encourage à faire confiance aux valeurs globales qu'à celles obtenues en sommant les différentes contributions des paniers et des feuilles ondulées.

La Figure 3.28 représente la surface spécifique pour 80 sections droites du lit entier contenant 4 éléments de Katapak-SP12. On observe que la surface spécifique fluctue d'une section à une autre. On va comparer nos valeurs à celle déterminée par Brunazzi et Viva[9]. Pour rappel, ces derniers ne tiennent pas compte du wall wiper dans le calcul de la surface spécifique. Ils ont simplement démonté l'empilage et ils ont mesuré les différentes contributions des paniers et des feuilles ondulées. Si on prend donc la moyenne des valeurs calculées sur les sections droites ne présentant pas de wall wiper sur tout le lit d'empilage, on remarque que cette valeur moyenne ($283.4 \text{ m}^2/\text{m}^3$) est en très bon accord avec celle évaluée par Brunazzi et Viva ($282,7 \text{ m}^2/\text{m}^3$).

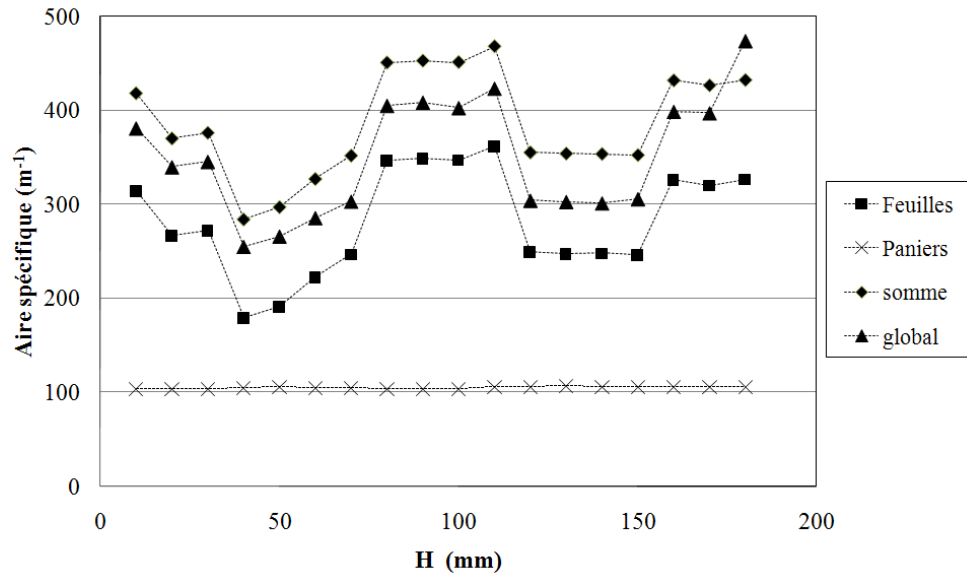


FIGURE 3.27: Différentes contributions de l'aire spécifique d'un élément de KatapakTM SP12

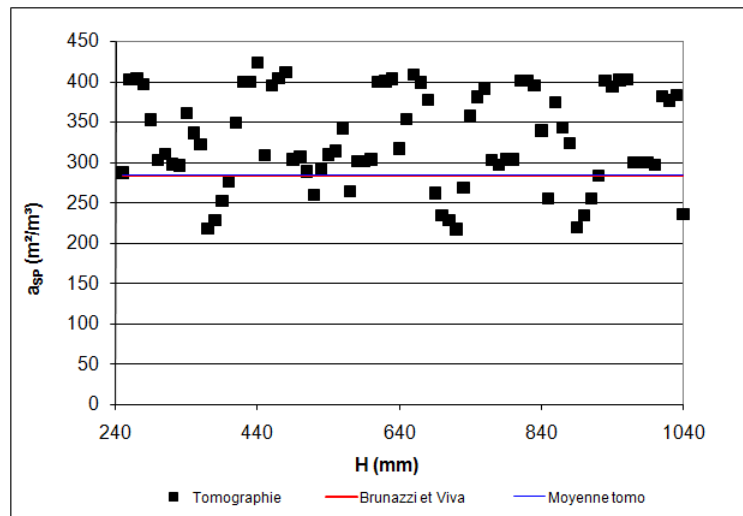


FIGURE 3.28: Valeurs de la surface spécifique du Katapak-SP12 pour différentes sections droites du lit d'empilage

3.4.4 Katapak SP11

Pour rappel, le Katapak-SP11 se différencie du Katapak-SP12 par la présence de 4 paniers et d'une seule feuille de Mellapak entre les paniers. La Figure 3.29 illustre une image d'une section droite de cet élément d'empilage. Les contributions de la surface externe des paniers catalytiques et des feuilles ondulées sont représentées respectivement en rouge et en vert. La porosité interne des paniers est masquée (en noir).

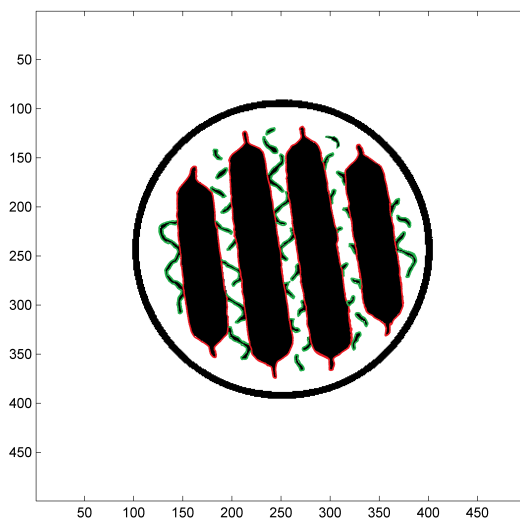


FIGURE 3.29: Image d'une section droite du Katapak SP11. Visualisation de la surface externe des paniers en rouge et de la surface des feuilles ondulées en vert

La Figure 3.30 représente la valeur globale de la surface spécifique d'un élément de Katapak-SP11 pour 80 sections droites de cet empilage. Ces valeurs varient en fonction de la position verticale de la section droite. En effet, comme on l'a vu dans le cas du Katapak-SP12, le nombre de trous varie d'une section à une autre et le wall wiper n'est présent que dans certaines sections droites. Les valeurs les plus élevées correspondent à la présence du wall wiper.

La Figure 3.31 montre la surface spécifique pour différentes sections du lit entier contenant 4 éléments de Katapak-SP11. Si on prend la moyenne des valeurs dans les régions où il n'y a pas de wall wiper, on obtient une surface spécifique de $218 \text{ m}^2/\text{m}^3$. Cette valeur est en accord avec celle déterminée par Brunazzi et Viva [9], qui vaut $210 \text{ m}^2/\text{m}^3$ pour un élément d'empilage similaire. Pour rappel, ces derniers ne tiennent pas compte du wall wiper dans le calcul de la surface spécifique. Ils ont simplement démonté l'empilage et ils ont mesuré les différentes contributions des paniers et des feuilles ondulées. Le fabricant Sulzer fournit la valeur de $212 \text{ m}^2/\text{m}^3$ qui ne tient pas compte non plus de

la présence du wall wiper.

Si on tient compte du wall wiper, la surface spécifique moyenne de cet empilage vaut $264 \text{ m}^2/\text{m}^3$. Cette valeur est plus élevée car la surface externe du wall wiper n'est pas négligeable, surtout dans le cas de colonnes de petit diamètre.

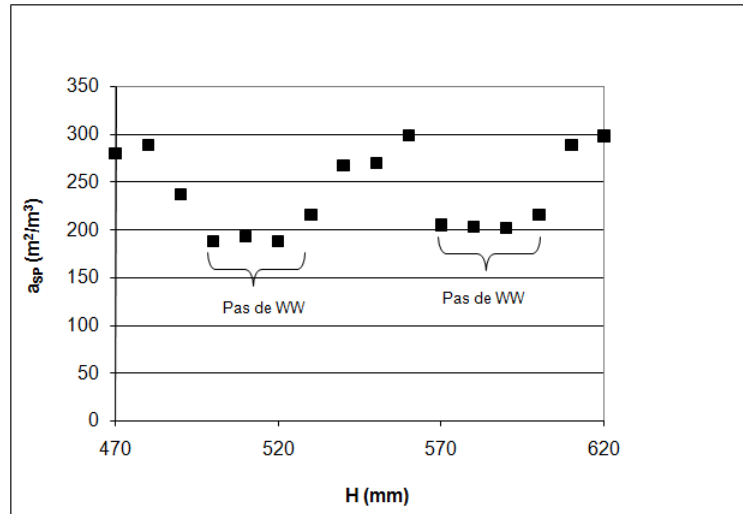


FIGURE 3.30: Valeurs de la surface spécifique pour différentes sections droites d'un élément de KatapakTM SP11

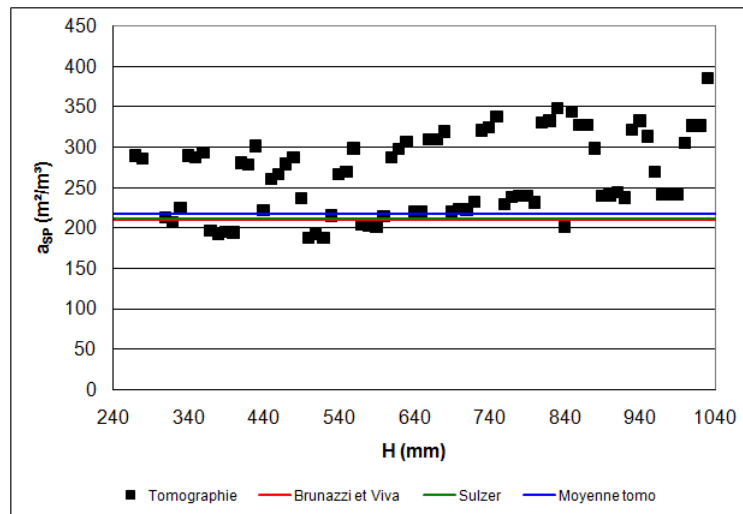


FIGURE 3.31: Valeurs de la surface spécifique du Katapak-SP11 pour différentes sections du lit d'empilage

Chapitre 4

Analyse des images de sections droites de l'empilage irrigué

4.1 Introduction

Des images tomographiques réalisées sur la colonne irriguée ont permis d'accéder à la distribution du liquide au sein des différents empilages étudiés (Mellapak Plus 752Y, Katapak-SP11 et Katapak-SP12). Les mesures ont d'abord été réalisées avec un écoulement de liquide seul, ensuite en présence d'un écoulement à contre-courant gaz-liquide. Pour rappel, la gamme de débit de liquide est comprise entre 40 et 300 l/h (3.4 et 38 m³/m²h). Et la vitesse du gaz varie entre 0 et 2 m/s.

4.2 Méthodologie

La colonne, initialement sèche, est arrosée pendant plusieurs minutes avec un débit de liquide élevé afin que l'empilage soit bien mouillé. Ensuite, on fait passer le premier débit de liquide (par ordre croissant) afin qu'un régime hydrodynamique stable puisse s'établir. Pendant ce temps, les différentes opérations d'étalonnage liées au tomographe peuvent être effectuées. Après une quarantaine de mesures, un nouvel étalonnage du détecteur doit être réalisé afin d'éviter toute variation au cours du temps de ses paramètres de gain ou d'offset. Lorsque les mesures tomographiques relatives à un débit donné sont terminées, on passe au débit suivant.

4.3 Les différentes opérations de traitement d'images

Comme dans le cas des images d'empilage sec, la reconstruction d'images des sections droites d'empilage irrigué ou complètement noyée est réalisée en utilisant la méthode de rétro-projection filtrée. Ces images vont subir différentes opérations afin d'éliminer le bruit

de fond et d'obtenir des images cohérentes et représentatives des différents empilages. Les diverses opérations de traitement d'images peuvent être appliquées aux images relatives aux trois types d'empilage (Mellapak Plus 752 Y, Katapak-SP12 et Katapak-SP11). Pour ces différentes opérations, on ne va montrer que des images du Katapak-SP11 complètement noyé, car c'est à partir des images d'empilage noyé que l'on va déterminer le pixel maximum à appliquer aux images d'empilage parcouru par un débit de liquide lors de l'étape de normation.

Outre les opérations mentionnées dans le cas de l'empilage sec, une opération supplémentaire, la soustraction des données de projections relatives à l'empilage sec a été réalisée afin d'obtenir des images du liquide seul.

Voici l'organigramme reprenant ces opérations :

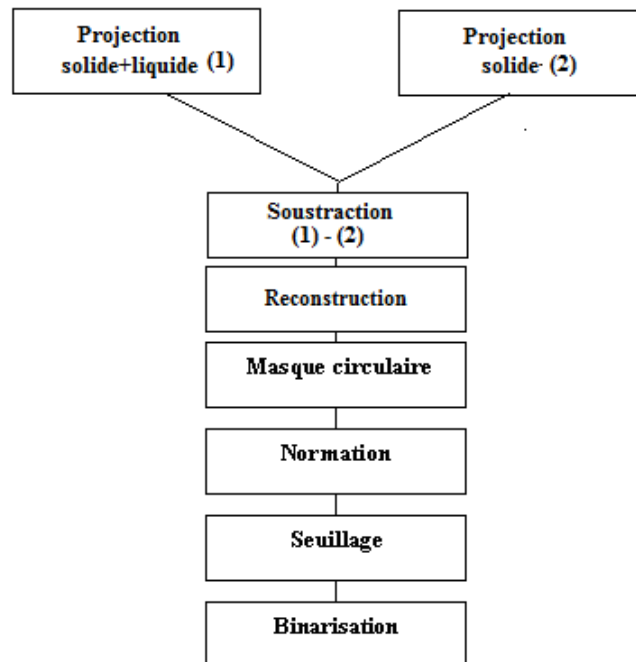


FIGURE 4.1: Organigramme reprenant les différentes opérations du traitement d'images d'empilage irrigué

4.3.1 Soustraction de l'empilage drainé

Sur toutes les images de sections droites parcourues par du liquide ou complètement noyées, il est difficile de séparer les contributions relatives à la phase solide formant l'empilage, de la phase liquide. Cela s'explique par des valeurs des coefficients d'atténuation assez proches pour ces deux phases, comme on peut le voir sur les Figures 4.2 et 4.3. Afin d'obtenir les images du liquide seul, il faut soustraire, avant reconstruction, les projections d'empilage sec des projections d'empilage irrigué (Figure 4.4). Cela va permettre de déterminer la distribution spatiale du liquide et de quantifier la rétention d'eau sur les différents empilages. Sur la Figure 4.4, les niveaux de gris sont trompeurs. Les valeurs semblent plus élevées, mais elles correspondent à une échelle de coefficients d'atténuation différents, comme l'indique l'échelle de gris située sur la droite de l'image.

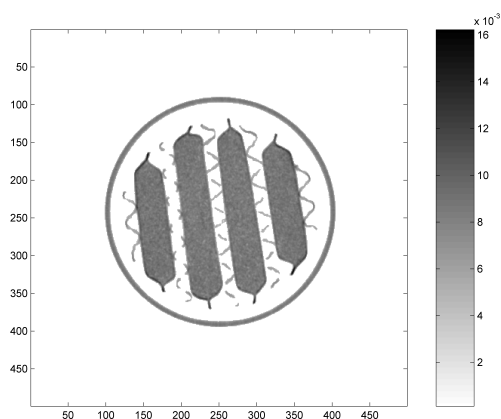


FIGURE 4.2: Image d'une section droite de Katapak-SP11 sec

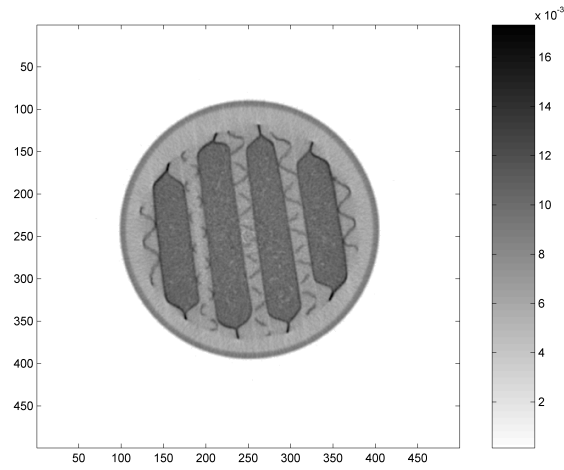


FIGURE 4.3: Image d'une section droite de Katapak-SP11 complètement noyé d'eau

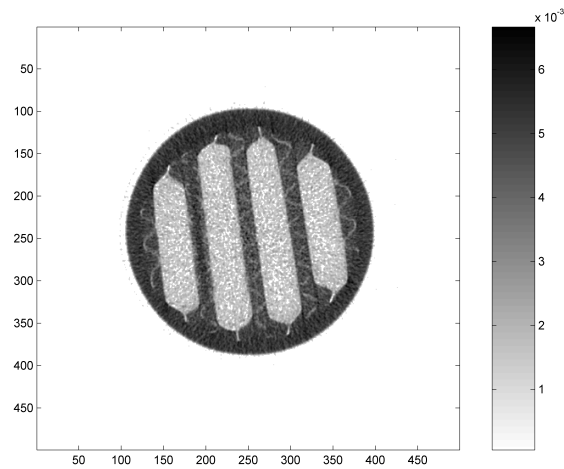


FIGURE 4.4: Image d'une section droite du liquide seul obtenue après avoir soustrait les projections d'empilage sec des projections d'empilage noyé

4.3.2 Application d'un masque circulaire

Cette opération consiste simplement à appliquer un masque circulaire sur les images brutes du liquide seul (Figure 4.4), afin d'éliminer les parois de la colonne et tous les pixels situés à l'extérieur de la section droite de la colonne. On obtient ainsi la Figure 4.5

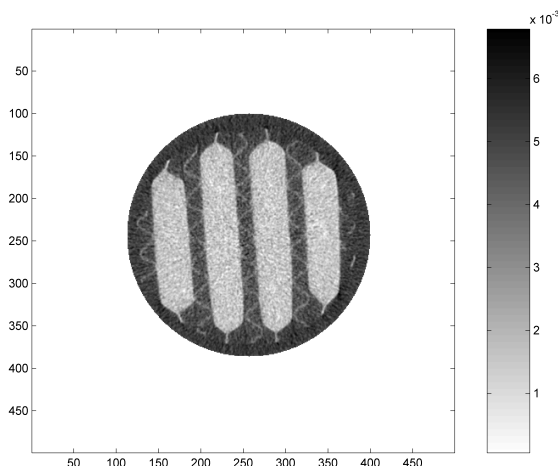


FIGURE 4.5: Image du liquide seul après application d'un masque circulaire

4.3.3 Normation

Tout comme dans le cas des images relatives à la colonne sèche, cette opération est nécessaire pour permettre une étude quantitative sur ces images reconstruites. Les pixels des images de sections droites d'empilage parcouru par un écoulement de liquide ont donc tous été normés par rapport à une valeur maximum, correspondant à un pixel entièrement rempli de liquide. Les pixels ne peuvent prendre que des valeurs comprises entre 0 % (pas de liquide) et 100% (rempli de liquide). La valeur de chaque pixel est donc égale à la valeur locale de la rétention liquide. Cette dernière grandeur sera abordée dans la suite de ce travail.

La valeur du pixel maximum correspondant à un pixel entièrement rempli de liquide a été calculée à partir des images de sections droites d'empilage noyé de liquide de la manière suivante : on a d'abord déterminé la valeur maximum des pixels pour différentes sections droites du lit d'empilage complètement rempli d'eau. Ensuite, on a pris la moyenne de toutes ces valeurs maximum comme pixel maximum. Les valeurs supérieures à 100 % dans les sections droites normées sont ramenées à 100 %.

4.3.4 Seuillage

Les images des sections droites de la colonne irriguée ou noyée ont dû être seuillées, afin d'éliminer le bruit de fond produit par les fluctuations du détecteur et des artéfacts de reconstruction. Pour rappel, le bruit peut être quantifié en observant les zones de l'image ne contenant aucun objet, par exemple à l'extérieur de la colonne. Dans ces zones, les pixels devraient théoriquement avoir une valeur nulle et dans le cas contraire, cela signifie que du bruit est présent. Le niveau du seuil a d'abord été déterminé à partir des images d'empilage noyé d'eau. La Figure 4.6 montre que le niveau de bruit pour les trois empilages est plus important dans le cas où la colonne est complètement remplie d'eau que dans le cas de la colonne sèche. Le niveau du bruit dépend en effet de la densité moyenne de l'objet scanné (Green, 2007[13]).

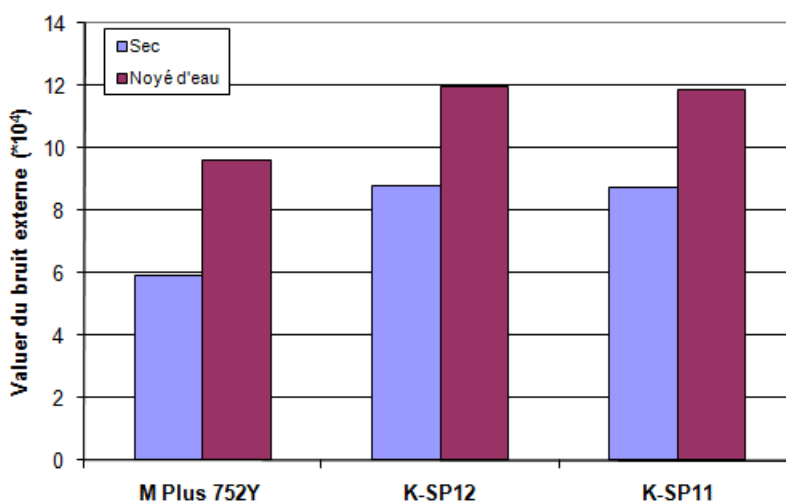


FIGURE 4.6: Niveaux du bruit à l'extérieur de la colonne pour différents empilages dans les conditions de colonne sèche et complètement remplie d'eau

Comme dans le cas des images de sections droites d'empilage sec, la méthode d'Otsu et la méthode basée sur le niveau du bruit externe ont été utilisées pour l'empilage noyé. La Figure 4.7 montre le profil d'une ligne de l'image de la Figure 4.5 ainsi que les niveaux de seuil fournis par ces deux méthodes de seuillage.

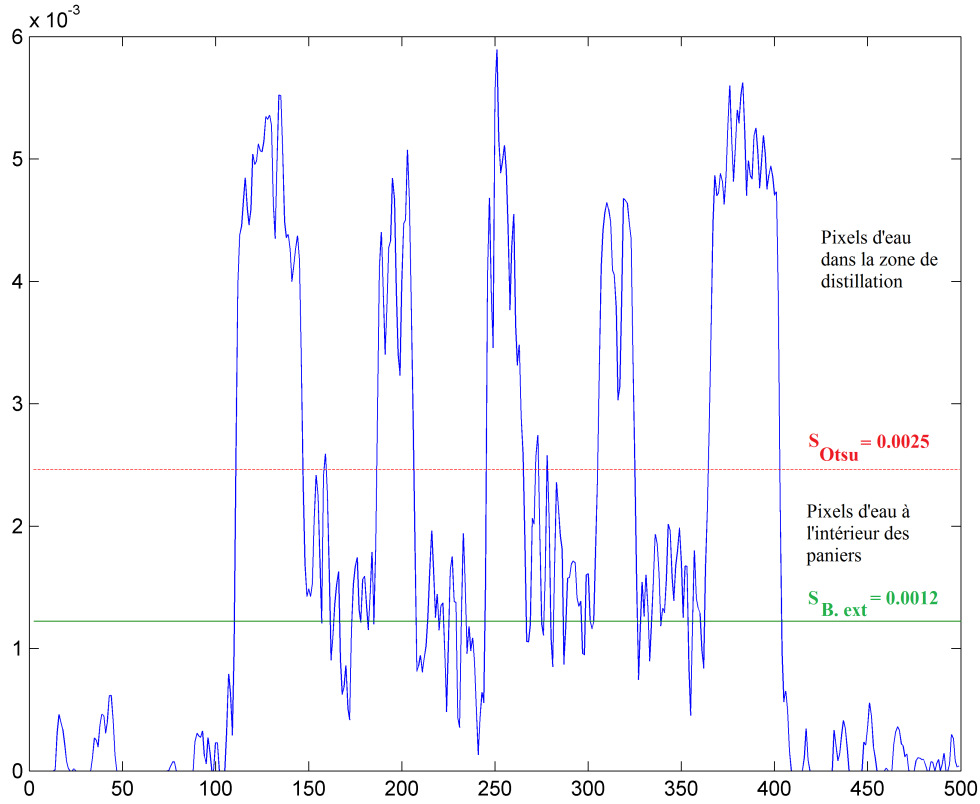


FIGURE 4.7: Profil d'une ligne de l'image de la Figure 4.5

On constate que le niveau du seuil obtenu par la méthode d'Otsu (0.0025) est deux fois plus élevé que celui fourni par la seconde méthode (0.0012). De plus, ce seuil est trop élevé car il enlève du liquide présent dans les paniers, comme on peut le voir sur la Figure 4.8, qui représente l'image de la Figure 4.5 avec application de ce seuil de 0.0025. En effet, cette méthode n'arrive pas à faire la différence entre les pixels contenant du bruit et les pixels partiellement remplis d'eau à l'intérieur des paniers, car ces derniers ont des valeurs d'atténuations beaucoup plus faibles que celles des pixels remplis d'eau présents dans la zone de distillation (Figure 4.5). La seconde méthode, par contre, est basée sur le niveau du bruit externe et permet d'enlever 100% du bruit en dehors de la colonne sans enlever les pixels de liquide présent dans les paniers (Figure 4.9).

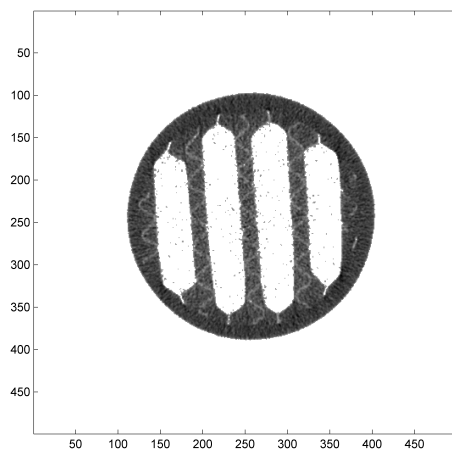


FIGURE 4.8: Application du seuil d'Otsu sur l'image de la Figure 4.5

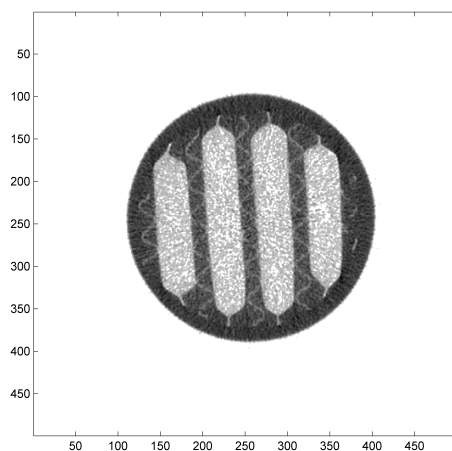


FIGURE 4.9: Application du seuil de la méthode basée sur le niveau du bruit externe sur l'image de la Figure 4.5

Le choix de la méthode de seuillage s'est donc porté sur celle basée sur le niveau du bruit externe. Cette méthode a été appliquée sur différentes sections droites du lit d'empilage noyé d'eau et on a pris la moyenne des valeurs des seuils calculés. Cependant, même si ce seuil permet d'éliminer 100 % de bruit externe sur les images de sections droites d'empilage parcouru par un écoulement de liquide, il risque également d'éliminer des pixels pouvant contenir un peu de liquide. En effet, la densité moyenne d'un empilage irrigué et donc partiellement rempli d'eau est plus faible que la densité moyenne d'un

empilage noyé, donc le niveau de bruit est plus faible. L'utilisation du seuil évalué sur les images de l'empilage noyé conduirait à sous-estimer certaines grandeurs telles que la rétention de liquide. Ce seuil correspond donc à une valeur maximum du seuil que l'on ne doit pas dépasser. C'est pourquoi, on a aussi déterminé le niveau du bruit externe sur les images d'empilage parcouru par le débit de liquide le plus faible (4.97 m/h). On obtient un seuil de 0.00093, qui correspond à la valeur minimum que l'on peut prendre pour le seuil dans la gamme de débit étudiée dans ce travail. Cette valeur de seuil permet de ne pas perdre d'information, mais cela pourrait conduire à sur estimer la quantité de liquide dans le lit d'empilage parcouru par des débits de liquide élevés, pour lesquelles le seuil n'élimine pas l'entièreté du bruit. Nous disposons donc des valeurs de seuils qui correspondent aux extrêmes. Nous avons opté pour une valeur moyenne entre ces deux valeurs de seuil : 0.00105 dans le cas du Katapak-SP11. Cette valeur de seuil sera appliquée sur les différentes sections droites d'empilage parcouru par un écoulement de liquide.

Le tableau 4.1 reprend les valeurs extrêmes des seuils pour les trois empilages utilisés dans les conditions d'un écoulement de liquide. Le seuil déterminé est similaire pour le Katapak-SP11 et le Katapak-SP12 car le niveau de bruit externe est le même pour ces deux empilages.

Seuil	Katapak-SP11	Katapak-SP12
$U_L = 40$ l/h	0.00093	0.00094
Colonne noyée	0.00118	0.00119
Valeur moyenne	0.00105	0.00106

Tableau 4.1: Valeurs de seuils dans le cas de la colonne irriguée

4.4 Analyse qualitative des images d'empilage irrigué

Les images présentées à la Figure 4.10, 4.11 et 4.12 montrent l'évolution de la distribution du liquide dans des sections droites du lit de Katapak-SP11 respectivement situées à 1400 mm, 1320 mm, 1240 mm, 1060 mm, 1180 mm, 1010 mm et 770 mm du distributeur multiponctuel, pour trois débits de liquide : 40, 110 et 200 l/h. Ces images sont obtenues en superposant les images binarisées de l'empilage solide (en gris) et du liquide en écoulement (en bleu). Les Figures 4.13 et 4.14 correspondent respectivement au Katapak-SP12 et au Mellapak Plus 752Y.

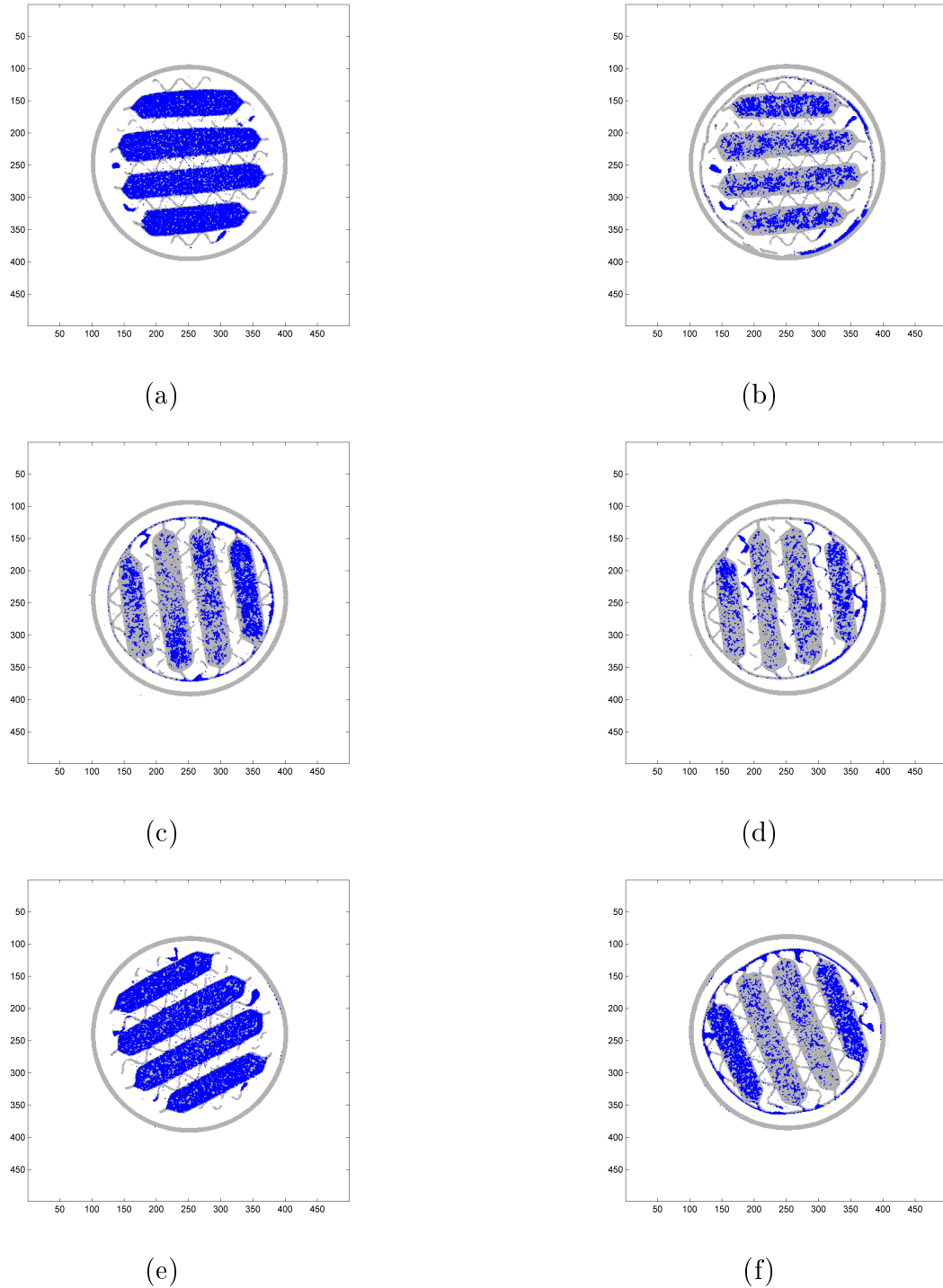


FIGURE 4.10: Evolution de la distribution de liquide à différentes hauteurs dans le lit et donc à différentes distance du distributeur : (a) 1400 mm ; (b) 1320 mm ; (c) 1240 mm ; (d) 1180 mm ; (e) 1010 mm et (f) 770 mm pour un débit de liquide de 40 l/h ($U_L=4.97$ m/h)

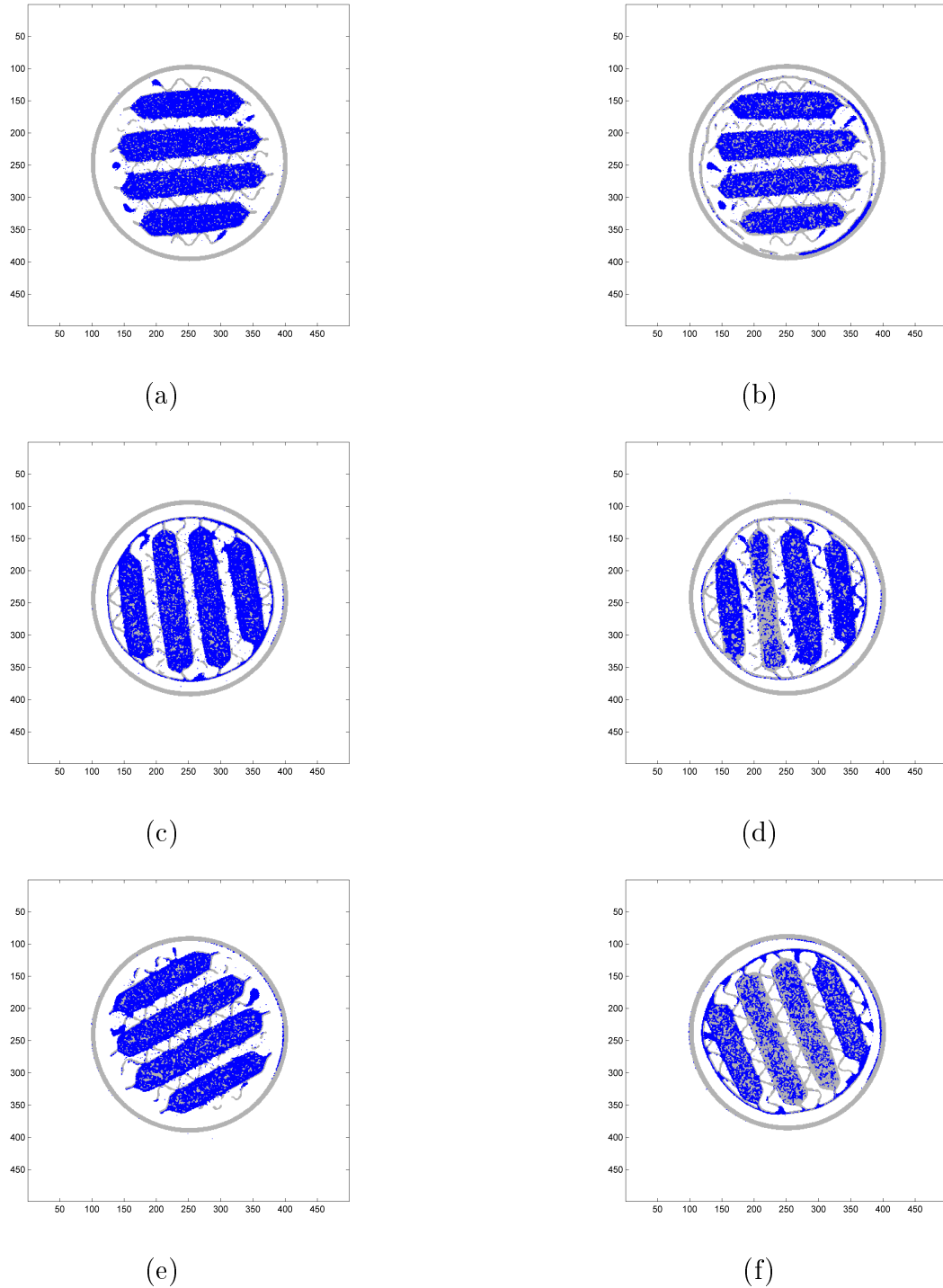


FIGURE 4.11: Evolution de la distribution de liquide à différentes hauteurs dans le lit et donc à différentes distance du distributeur : (a) 1400 mm ; (b) 1320 mm ; (c) 1240 mm ; (d) 1180 mm ; (e) 1010 mm et (f) 770 mm pour un débit de liquide de 110 l/h ($U_L=12.7$ m/h)

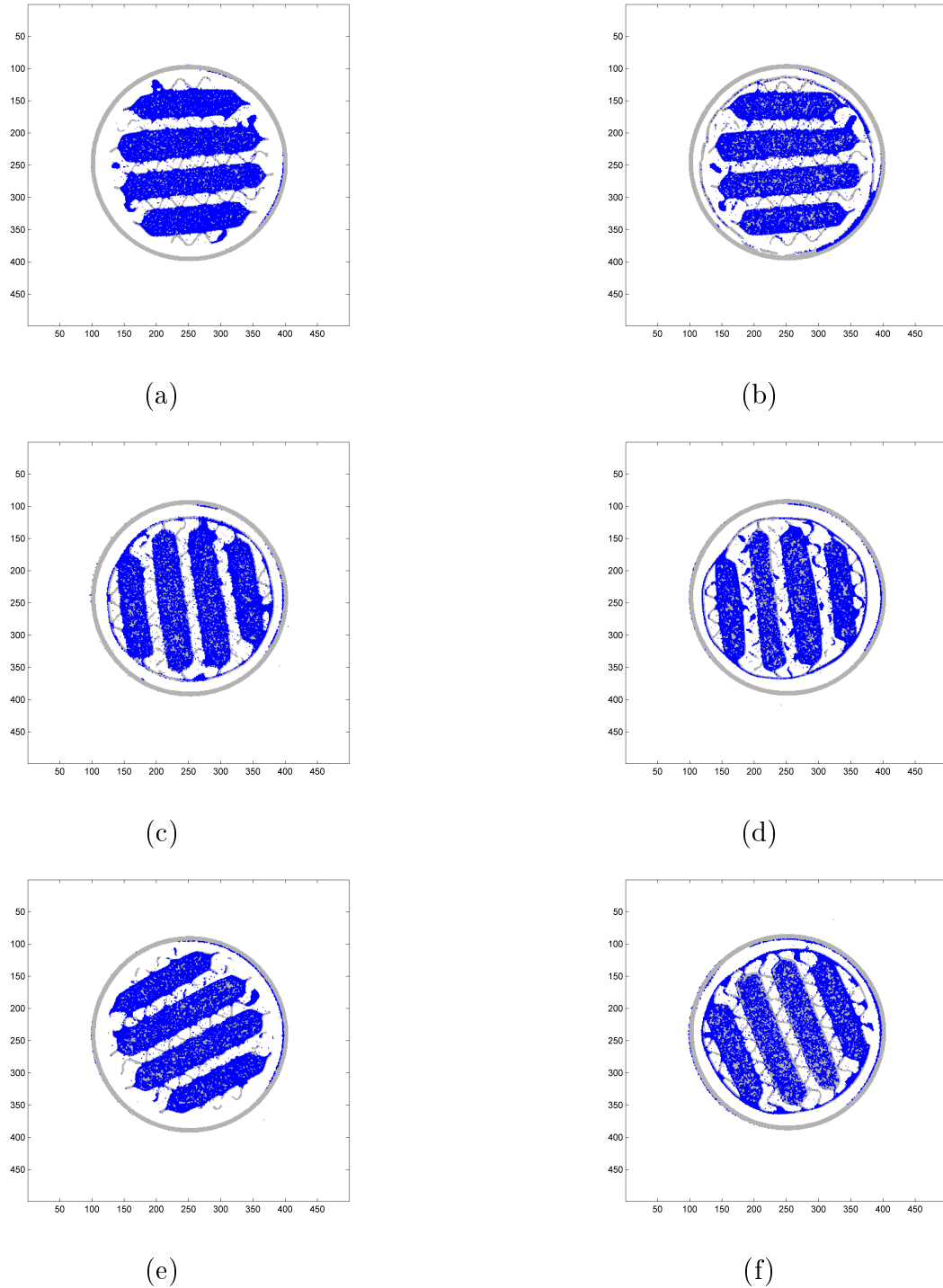
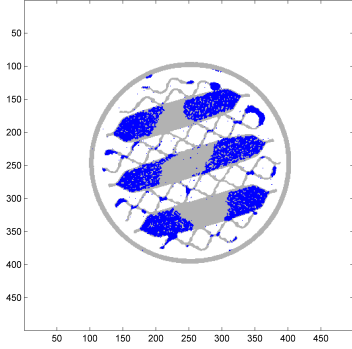
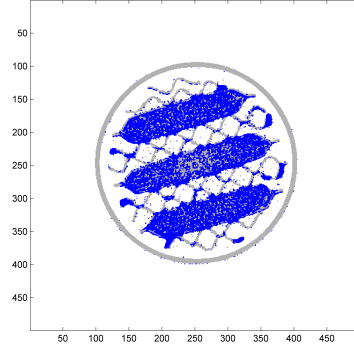


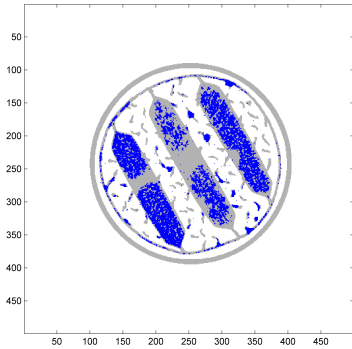
FIGURE 4.12: Evolution de la distribution de liquide à différentes hauteurs dans le lit et donc à différentes distance du distributeur : (a) 1400 mm ; (b) 1320 mm ; (c) 1240 mm ; (d) 1180 mm ; (e) 1010 mm et (f) 770 mm pour un débit de liquide de 200 l/h ($U_L=23.1$ m/h)



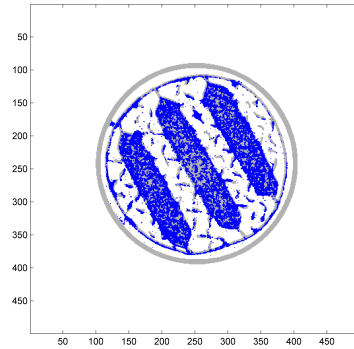
(a) $U_L = 4.97\text{m/h}$



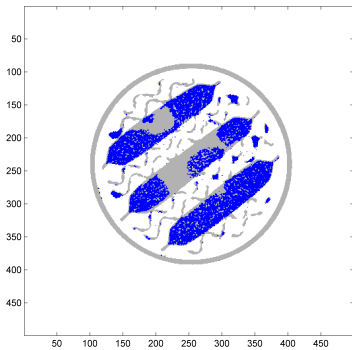
(d) $U_L = 23.10\text{m/h}$



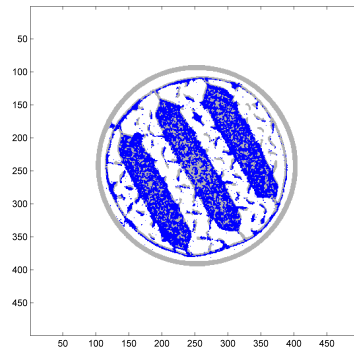
(b) $U_L = 4.97\text{m/h}$



(e) $U_L = 23.10\text{m/h}$

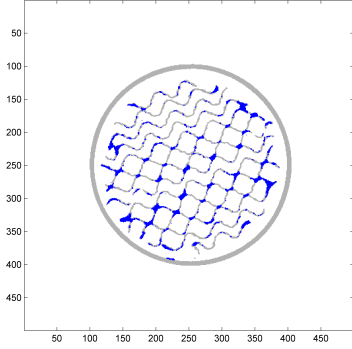


(c) $U_L = 4.97\text{m/h}$

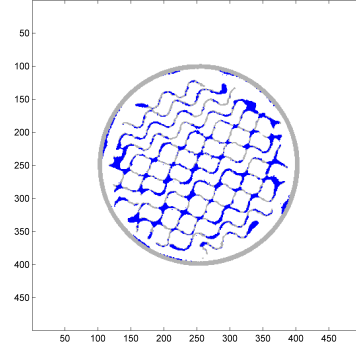


(f) $U_L = 23.10\text{m/h}$

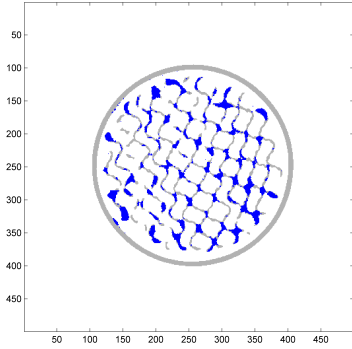
FIGURE 4.13: Evolution de la distribution de liquide dans le lit de Katapak-SP12 à différentes distance du distributeur : (a) et (e) 1400 mm ; (b) et (d) 1320 mm ; (c) et (f) 1240 mm pour deux débits de liquide : 40 et 200 l/h ($U_L=4.97$ et 23.1 m/h)



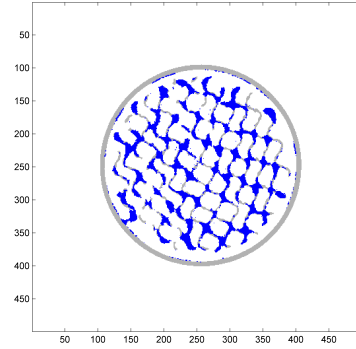
(a) $U_L = 4.97 \text{ m/h}$



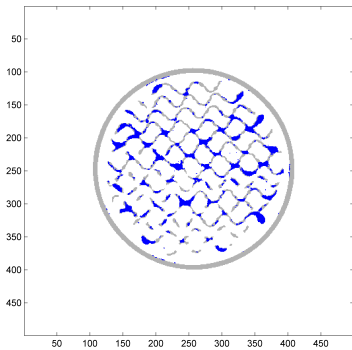
(d) $U_L = 23.10 \text{ m/h}$



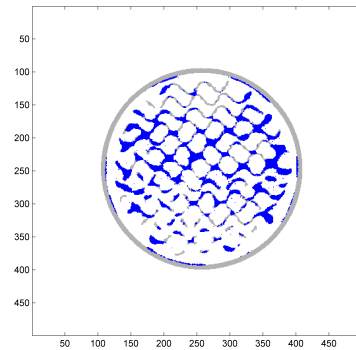
(b) $U_L = 4.97 \text{ m/h}$



(e) $U_L = 23.10 \text{ m/h}$



(c) $U_L = 4.97 \text{ m/h}$



(f) $U_L = 23.10 \text{ m/h}$

FIGURE 4.14: Evolution de la distribution de liquide dans le lit de Mellapak Plus 752Y à différentes distance du distributeur : (a) et (e) 1430 mm ; (b) et (d) 1140 mm ; (c) et (f) 970 mm pour deux débits de liquide : 40 et 200 l/h ($U_L = 4.97$ et 23.1 m/h)

Observations

- La majorité du liquide se situe dans les paniers contenant les billes de verre de 1 mm de diamètre, ce qui prouve l'efficacité du Katapak-SP11. En effet, ce type d'empilage est conçu de telle sorte que le liquide s'écoule vers les paniers où se produit la réaction chimique et ne permet pas au gaz de passer à l'intérieur de ces paniers ;
- Une faible partie du liquide se situe au point de contact des feuilles ondulées et on constate que l'écoulement semble se faire sous la forme d'un film de liquide ;
- Le wall wiper semble bien remplir son rôle, qui est de limiter l'écoulement de liquide à la paroi de la colonne en le redistribuant vers l'intérieur du lit d'empilage. Cependant, il reste encore un peu de liquide qui s'écoule le long de la paroi de la colonne ;
- Plus le débit de liquide est élevé, plus la quantité de liquide dans les paniers est élevée. La fraction de surface et donc la qualité du mouillage s'accroît de manière notable avec le débit de liquide ;
- Pour les débits de liquide faibles (4.97 et 12.70 m/h), on constate que les paniers externes, c'est-à-dire ceux situés aux extrémités de l'empilage, sont préférentiellement parcourus par du liquide par rapport aux paniers centraux. Cela peut être dû à une mauvaise distribution du liquide provenant de l'élément de Mellapak situé au-dessus du Katapak-SP11 ;
- Les mêmes observations peuvent être faites pour le Katapak-SP12 et le Mellapak Plus 752Y.

4.5 Analyse quantitative des images d'empilage irrigué

4.5.1 Définition de la rétention de liquide

Il s'agit de la quantité de liquide retenue dans un lit d'empilage fixe traversé par un écoulement de liquide. La rétention de liquide correspond donc au volume de liquide présent dans le lit rapporté au volume de ce dernier. Elle est représentée par h_L , avec :

$$h_L = \frac{V_{Liquide}}{V_{Colonne}} \quad (4.1)$$

La rétention totale de liquide est composée de :

- la rétention dynamique, qui correspond au liquide qui s'écoule de la colonne lorsque l'alimentation en liquide et en gaz sont arrêtées simultanément ;
- la rétention statique, qui correspond au liquide qui reste définitivement emprisonné dans le lit d'empilage après l'arrêt total de l'écoulement.

On obtient donc la relation suivante :

$$h_{L,Totale} = h_{L,Dynamique} + h_{L,Statique} \quad (4.2)$$

La rétention de liquide statique peut être subdivisée en trois contributions :

- La rétention dans les pores des particules de catalyseur, h_{Pores} , correspond comme son nom l'indique au liquide retenu dans les pores. Dans ce travail, cette valeur est nulle puisque les paniers contiennent des billes de verre non-poreuses ;
- La rétention capillaire, $h_{Capillaire}$, qui représente le liquide retenu par capillarité dans les paniers du Katapak-SP12 ou du Katapak-SP11. Cette rétention résulte d'un bilan de force entre la gravité et les forces capillaires. Après drainage, on obtient une hauteur de liquide au bas des paniers dite hauteur capillaire ;
- La rétention résiduelle, $h_{Résiduelle}$, correspond au liquide retenu dans les paniers au dessus de la hauteur capillaire. Ce liquide se situe surtout au point de contact des billes contenues dans les paniers.

La relation (4.2) devient donc :

$$h_{L,Totale} = h_{L,Dynamique} + h_{L,Pores} + h_{L,Capillaire} + h_{L,Résiduelle} \quad (4.3)$$

Or, comme les billes de verre sont non-poreuses, on obtient :

$$h_{L,Totale} = h_{L,Dynamique} + h_{L,Capillaire} + h_{L,Résiduelle} \quad (4.4)$$

4.5.2 Rétention statique de liquide

La rétention statique de liquide correspond donc au liquide retenu par l'empilage après l'arrêt de l'alimentation en liquide. La procédure consiste à noyer lentement et complètement la colonne afin d'éviter la présence de bulles d'air. Après 24 heures, le bouchon placé en bas de la colonne a été enlevé permettant ainsi au liquide de drainer librement. Dans le but d'étudier l'influence de la position verticale de l'empilage sur la rétention de liquide, plusieurs sections droites des quatre éléments de Katapak-SP présents dans la colonne ont été scannées. Les images ont été prises tout les 10 mm, sauf dans la partie inférieure de chaque empilage où l'on a pris un pas de 5 mm car il y a plus de liquide dans cette partie. L'inconvénient de la tomographie pour ce genre de mesure est le temps du scan qui prend environ une minute par section droite. Donc le temps nécessaire pour scanner l'entièreté du lit d'empilage est de plus ou moins deux heures. On a commencé à prendre des mesures tomographiques après une heure de drainage. Donc la première série de mesures partant du haut vers le bas de la colonne a été terminée après trois heures de drainage. La mesure a été répétée après 24 heures de drainage. La rétention statique varie au sein d'un élément d'empilage mais également d'un élément à l'autre, comme on peut le voir sur la Figure 4.15.

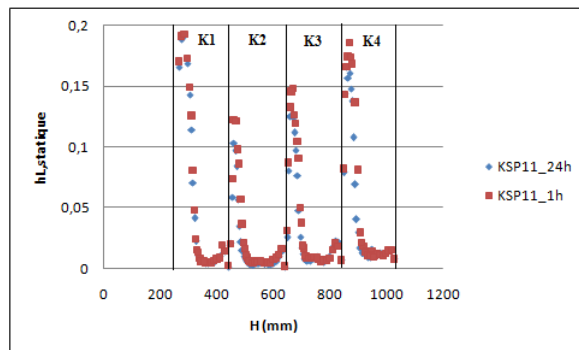


FIGURE 4.15: Rétention statique de liquide dans un lit de Katapak-SP11 rapportée à la section droite de la colonne après 1 heure et 24 heures de drainage

En effet, on observe que la rétention statique est plus élevée en bas de chaque élément. Cette rétention correspond à la rétention capillaire qui s'étend sur une certaine hauteur (dite hauteur capillaire). Au dessus de cette hauteur capillaire, se situe la rétention résiduelle de liquide qui correspond au liquide retenu aux points de contact entre les billes de verre dans les paniers.

On constate également une diminution de la rétention statique de liquide partant du haut de la colonne, empilage K4, vers l'empilage du bas, K2 (Figure 4.15). Cette diminution ne peut pas être uniquement due au temps de drainage supplémentaire dû à la durée des mesures tomographiques, car le même comportement s'est reproduit après 24

heures de drainage (Figure 4.15). De plus, il est évident que l'empilage K1, situé en bas du lit d'empilage, retient plus de liquide que les empilages situés plus haut, indépendamment du temps de drainage. Le même comportement a été observé pour le Katapak-SP12 après une heure de drainage (Figure 4.16).

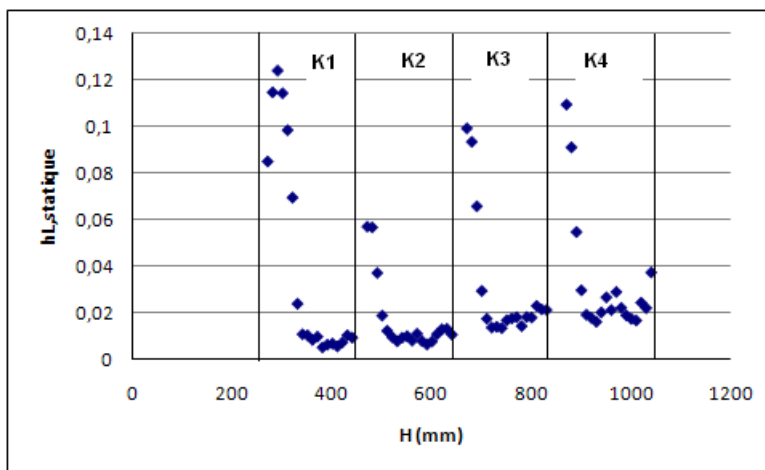


FIGURE 4.16: Rétention statique de liquide dans un lit de Katapak-SP12 rapportée à la section totale de la colonne après 1heure de drainage

Il a donc été démontré qu'au delà de 1 heure, le temps de drainage n'a pas d'effet significatif sur la rétention statique comme on a pu le voir sur un lit de Katapak-SP11. Cependant, on pourrait supposer que le comportement de drainage du Mellapak est différent de celui du Katapak-SP. Le contact entre les treillis métalliques de deux éléments de Katapak-SP adjacents favorise le passage du liquide d'un élément à l'autre par capillarité. Tandis que les feuilles ondulées du Mellapak ralentissent le drainage du liquide venant de l'empilage du dessus. C'est ce qui pourrait expliquer la différence entre l'empilage K1, placé au dessus du Mellapak situé en bas du lit, et des autres empilages de Katapak-SP.

Le tableau 4.2 reprend les valeurs de rétention statique de liquide obtenues par tomographie à rayons X pour des lits de Katapak-SP11 et de Katapak-SP12 et les valeurs de rétention statique de liquide obtenues par la méthode de pesée (Viva, 2008[40]). La méthode de pesée consiste à plonger l'élément d'empilage dans un bassin rempli d'eau et ensuite de le retirer de ce bassin et de le placer sur un support en plastique. Ensuite, on laisse drainer le liquide que l'on récupère en bas de cet élément pendant une heure. On constate que les valeurs obtenues par la méthode de pesée sont assez proches de celles obtenues pour les empilages qui sont en contact avec un élément de Mellapak Plus 752Y (K1 et K4) obtenues à partir des images tomographiques. Les petites différences peuvent être expliquées par le fait que les configurations expérimentales ne sont pas exactement les mêmes.

Empilage	K1	K2	K3	K4	Viva (2008)
Katapak-SP11	5.22 %	3.18 %	4.51 %	6.29 %	6.83 %
Katapak-SP12	4.93 %	2.16 %	3.84 %	4.21 %	4.97 %

Tableau 4.2: Comparaison entre valeurs de rétention statique obtenues par tomographie et celles obtenues par la méthode de pesée pour le Katapak-SP11 et le Katapak-SP12.

4.5.3 Rétention globale de liquide

4.5.3.1 Pour un écoulement de liquide seul.

Des mesures tomographiques ont été effectuées à différentes hauteurs dans le lit pré mouillé et pour cinq vitesses superficielles dans un ordre croissant : 4.97 m/h (40 l/h), 9.24 m/h (80 l/h), 12.7 m/h (110 l/h), 17.32 m/h (150 l/h) et 23.10 m/h (200 l/h).

Mellapak Plus 752 Y

La Figure 4.17 représente la rétention totale en fonction de la hauteur (distance par rapport au pied de la colonne) dans un lit contenant 4 éléments de Mellapak Plus 752Y (M1, M2, M3 et M4) pour cinq vitesses superficielles du liquide. La rétention de liquide a été calculée en sommant les contributions relatives de tous les pixels situés à l'intérieur de la colonne, dans 53 images reconstruites du liquide seul, préalablement seuillées. On ne dispose pas de toutes les valeurs de rétention de liquide pour l'élément M1 car le bras du tomographe ne peut pas descendre en dessous d'une hauteur de 150 mm. Sur la Figure 4.17, on observe que :

- la rétention de liquide augmente avec le débit de liquide ;
- la rétention de liquide chute au niveau des jonctions entre deux éléments de Mellapak Plus 752Y.
- l'élément M4 présente une rétention de liquide plus faible que les autres éléments. Cela peut s'expliquer par une maldistribution provoquée par les éléments d'empilage en vrac (pall rings) situés juste au dessus de cet élément M4.

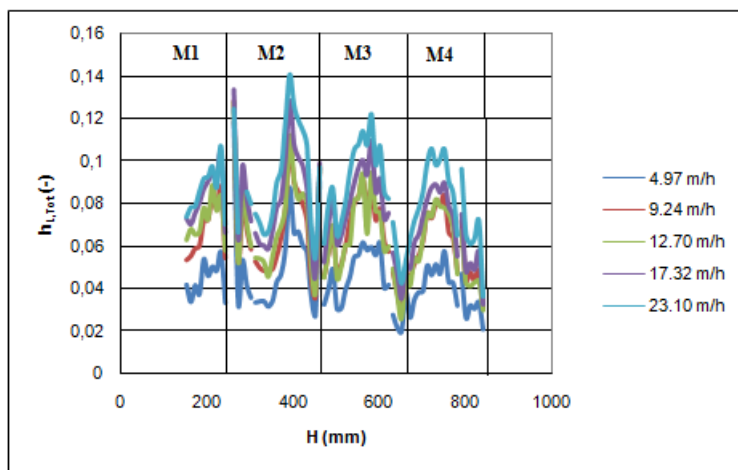


FIGURE 4.17: Rétention totale de liquide en fonction de la hauteur du lit de Mellapak Plus 752Y, c'est-à-dire en fonction de la distance par rapport au pied de la colonne.

Katapak-SP12 et Katapak-SP11

Les Figures 4.18 et 4.19 représentent la rétention totale en fonction de la hauteur (distance par rapport au pied de la colonne) respectivement dans un lit contenant 4 éléments de Katapak-SP11 et dans un lit contenant 4 éléments de Katapak-SP12 pour cinq vitesses superficielles du liquide. La rétention de liquide a été calculée en sommant les contributions relatives de tous les pixels situés à l'intérieur de la colonne, dans 80 images reconstruites du liquide seul préalablement seuillées. Logiquement, la rétention totale de liquide augmente avec la vitesse superficielle du liquide (Figures 4.18 et 4.19). Dans le cas du Katapak-SP12 et du Katapak-SP11, on constate qu'en partant du bas du lit (côté gauche du graphe), la rétention totale pour chaque Katapak augmente dans un premier temps, puis diminue en haut de l'élément, proche de la jonction entre deux Katapak. Entre deux Katapak, la surface du solide formant l'empilage diminue et tend vers zéro. En effet, l'épaisseur des paniers se réduit à deux épaisseurs de treillis (Figure 3.20), conduisant à une réduction de la rétention dans les paniers et donc à une diminution de la rétention totale. La rétention maximale se situe un peu près à mi hauteur de chaque élément. Pour les vitesses superficielles les plus élevées étudiées dans ce travail (17.33 et 23.10 m/h correspondant à des débits de liquide de 150 et 200 l/h), la rétention totale diminue avec la hauteur à laquelle se trouve l'empilage (distance par rapport au pied de la colonne) et donc augmente avec la distance depuis le distributeur.

En comparant les Figures 4.18 et 4.19, on constate que la rétention totale de liquide est plus élevée dans un lit de Katapak-SP11 que dans un lit de Katapak-SP12. Cela s'explique par un plus grand nombre de paniers dans le Katapak-SP11. En effet, nous savons que les paniers retiennent plus de liquide que les feuilles ondulées de Mellapak et même si le nombre de feuilles ondulées est plus petit pour le Katapak-SP11 que le Katapak-SP12, l'effet des paniers est prédominant.

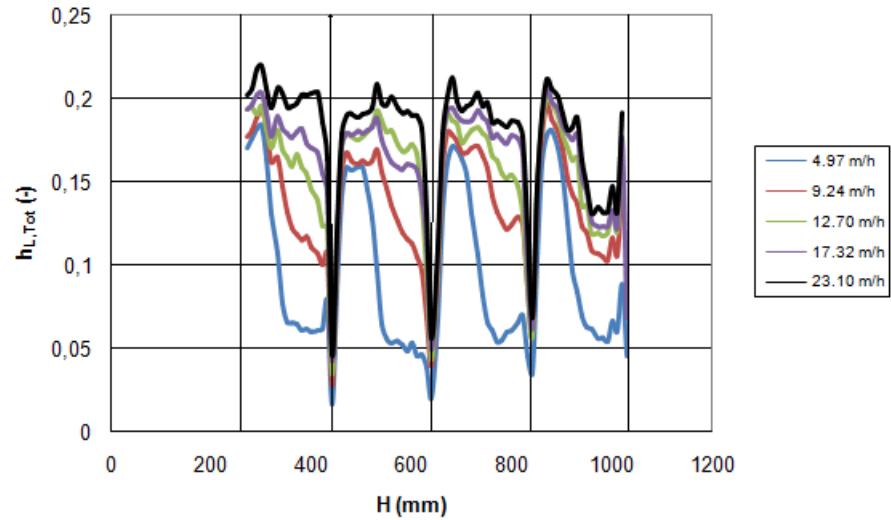


FIGURE 4.18: Rétention totale de liquide en fonction de la hauteur du lit de Katapak-SP11, c'est-à-dire en fonction de la distance par rapport au pied de la colonne.

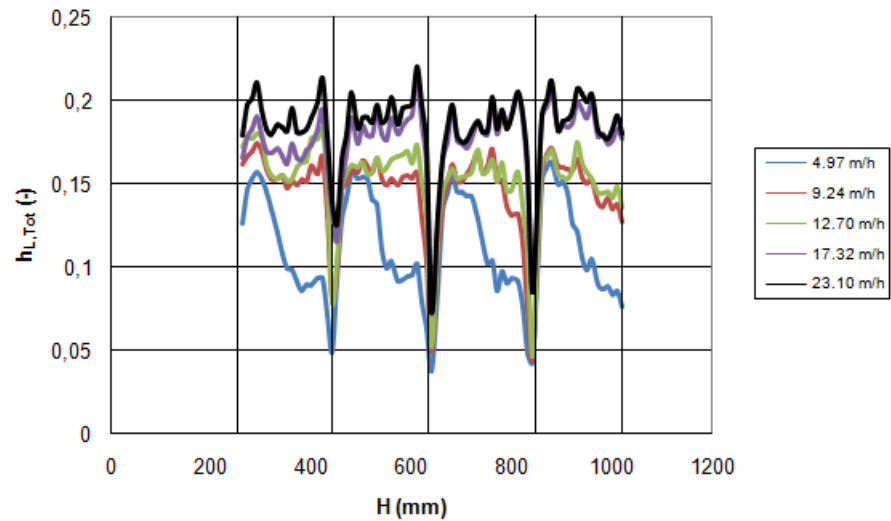


FIGURE 4.19: Rétention totale de liquide en fonction de la hauteur du lit de Katapak-SP12, c'est-à-dire en fonction de la distance par rapport au pied de la colonne.

4.5.3.2 Pour un écoulement à contre courant gaz-liquide

Des mesures tomographiques ont ensuite été réalisées sur la colonne parcourue par un écoulement à contre-courant gaz-liquide. Le gaz est alimenté en bas et le liquide est

alimenté en haut de la colonne, préalablement pré mouillée. La gamme de vitesses superficielles du liquide et du gaz sont respectivement de 0 à 25 m/h (correspondant à des débits de liquide de 0 à 200 l/h) et de 0 à 2 m/s (correspondant à des Facteurs F de 0 à 2.19 m/s $(\text{kg/m}^3)^{0.5}$).

Katapak-SP11 et Katapak-SP12

Les Figures 4.20 et 4.21 représentent la rétention totale de liquide en fonction du facteur F pour différentes vitesses superficielles du liquide, respectivement dans un lit de Katapak-SP11 et dans un lit de Katapak-SP12.

Pour rappel, le facteur F dépend de la vitesse superficielle du gaz (u_G) et de la masse volumique du gaz (ρ_G) selon la relation suivante :

$$F = u_G \cdot \sqrt{\rho_G} \quad (4.5)$$

Logiquement, pour un débit de liquide donné, la rétention totale de liquide augmente avec le débit de gaz. Pour une vitesse superficielle du gaz donnée, la rétention de liquide augmente avec le débit de liquide. On constate également que l'engorgement, qui correspond au changement de pente, est atteint plus rapidement pour les débits de liquide élevés. A débit de liquide fixe, l'engorgement apparaît pour des débits de gaz plus faibles dans le cas du Katapak-SP11. Dans les empilages modulaires comme le Katapak, les paniers de catalyseurs sont complètement remplis d'eau lorsque le débit de liquide est élevé et le surplus de liquide s'écoule dans la zone de distillation. Le gaz n'a presque plus d'espace pour circuler, ce qui conduit à l'engorgement. Cet espace disponible pour le gaz est plus réduit dans le cas du Katapak-SP11, en raison d'un nombre plus important de paniers (4 au lieu de 3) entraînant ainsi un engorgement plus rapide.

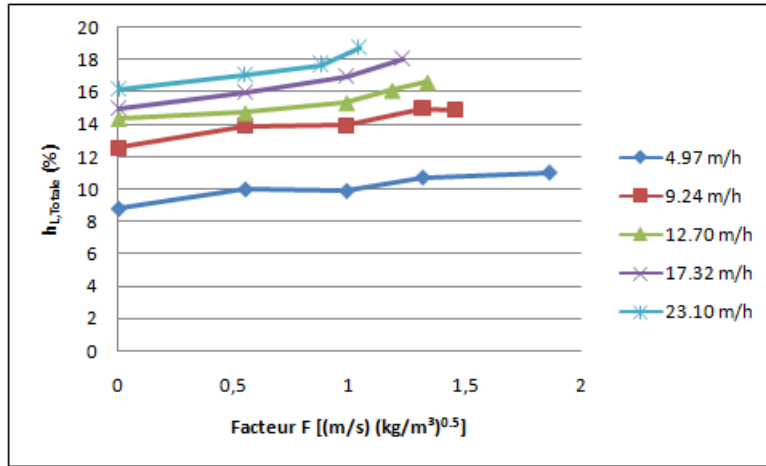


FIGURE 4.20: Rétention totale de liquide pour différents débits de liquide en fonction du facteur F dans un lit de Katapak-SP11

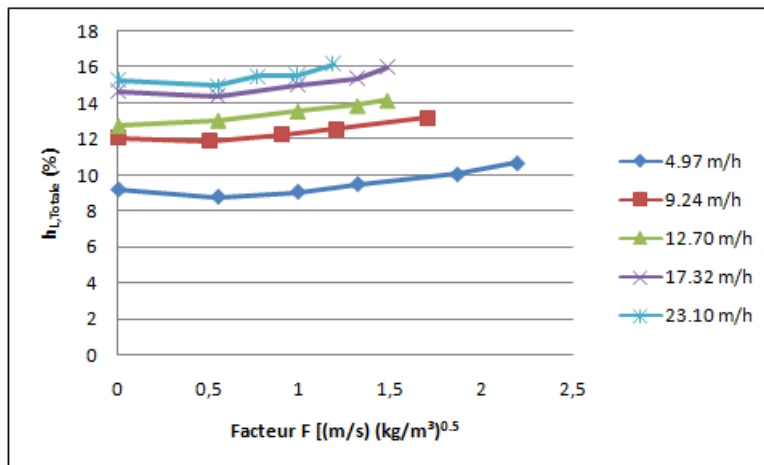


FIGURE 4.21: Rétention totale de liquide en fonction du facteur F pour différents débits de liquide dans un lit de Katapak-SP12

4.5.3.3 Comparaison avec la littérature

Mellapak Plus 752Y

Dans la littérature, on trouve peu d'informations sur ce type d'empilage de conception relativement récente :

- Viva[40] (2008) : Valeurs de rétention de liquide pour le Mellapak Plus 752Y (diamètre de 0.1 m) obtenues par la méthode de pesée ;

- Behrens[2] (2006) : Valeurs de rétention de liquide pour le Mellapak Plus 752Y (diamètre de 0.45 m) obtenues par la méthode volumétrique.

La Figure 4.22 compare les valeurs de rétention dynamique sur le Mellapak Plus 752 Y obtenues par tomographie à rayons X avec celles fournies par la littérature. Les résultats sont en bon accord avec ceux de Viva car ses mesures ont été effectuées sur les mêmes éléments d'empilage. Les différences avec Behrens peuvent s'expliquer par un empilage de plus grand diamètre (0.45 m). Cependant l'allure des trois courbes est similaire.

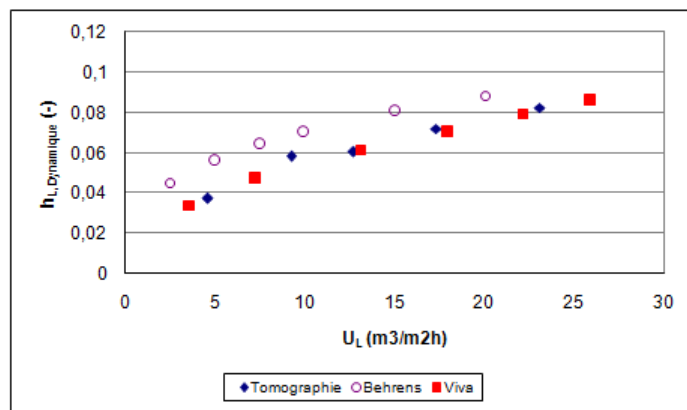


FIGURE 4.22: Comparaison des valeurs de rétention de liquide obtenues par tomographie à rayons X avec celles déterminées par Viva et Behrens dans un lit de Mellapak Plus 752 Y parcouru par un écoulement de liquide

Katapak-SP11 et Katapak-SP12

Les Figures 4.23 et 4.24 comparent les valeurs de rétention globale de liquide obtenues à partir de la tomographie à rayons X et celles déterminées par Viva[40] (2008). Cet auteur utilise exactement les même types d'empilage que nous (même dimensions). Les Figures 4.23 et 4.24 montrent également l'influence du niveau de seuillage des images tomographiques sur les valeurs de rétention globale :

- S1 : seuil déterminé à partir des images de sections droites du lit d'empilage parcouru par le débit de liquide le plus faible ($U_L = 4.97\text{m/h}$) sur lesquelles le niveau de bruit est faible ;
- S2 : seuil déterminé à partir des images de sections droites du lit d'empilage complètement rempli d'eau, sur lesquelles le niveau de bruit est élevé ;
- S3 : moyenne entre S1 et S2

On constate qu'avec le seuil S1, on est en bon accord avec les valeurs de Viva pour les faibles débits de liquide. Tandis que pour les débits de liquide élevés, le seuil S1 sur-estime les valeurs de rétention de liquide. Cela s'explique par le fait que le seuil S1 ne permet

pas d'éliminer 100% de bruit sur les images d'empilage parcouru par des débits de liquide élevés où le niveau de bruit est plus élevé que sur les images correspondant au débits de liquide faibles. Par contre, avec le seuil S2, on est en bon accord dans le cas des débits élevés tandis que dans le cas des débits faibles, ce seuil conduit à sous-estimer les valeurs de rétention de liquide. Ce comportement est dû au fait que ce seuil étant trop élevé pour les faibles débits de liquide, il enlève tout le bruit mais aussi des pixels pouvant contenir du liquide. C'est pourquoi, nous avons choisi comme seuil, la moyenne entre les deux premiers, S3. On constate qu'avec ce seuil, on est en bon accord avec les valeurs de Viva dans toute la gamme de débits de liquide.

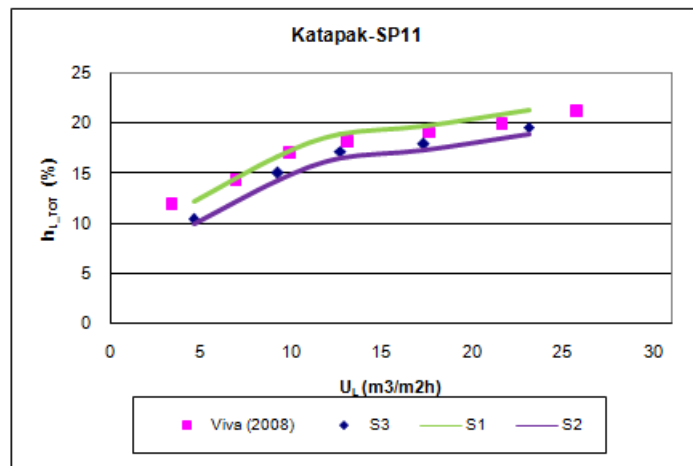


FIGURE 4.23: Comparaison des valeurs de rétention de liquide obtenues par tomographie à rayons X avec celles déterminées par Viva dans un lit de Katapak-SP11 parcouru par un écoulement de liquide

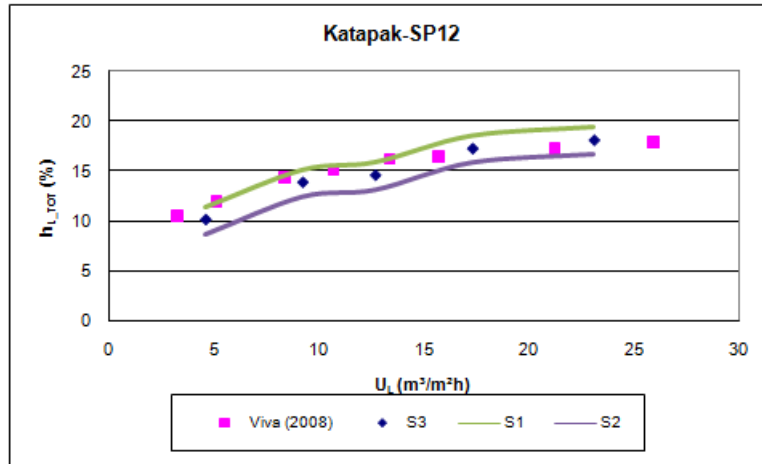


FIGURE 4.24: Comparaison des valeurs de rétention de liquide obtenues par tomographie à rayons X avec celles déterminées par Viva dans un lit de Katapak-SP12 parcouru par un écoulement de liquide

Les Figures 4.25 et 4.26 représente l'influence de l'écoulement du gaz sur la rétention totale de liquide respectivement dans un lit de Katapak-SP11 et dans un lit de Katapak-SP12. On constate que les valeurs déterminées à partir de la tomographie sont en accord avec celles mesurées par Viva[40] (2008).

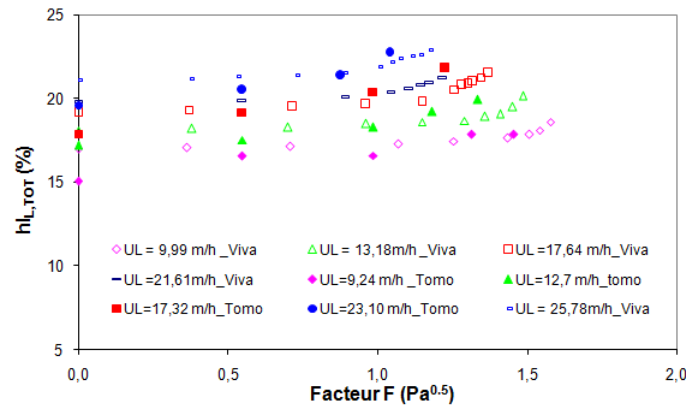


FIGURE 4.25: Rétention totale de liquide en fonction du Facteur F dans un lit de Katapak-SP11

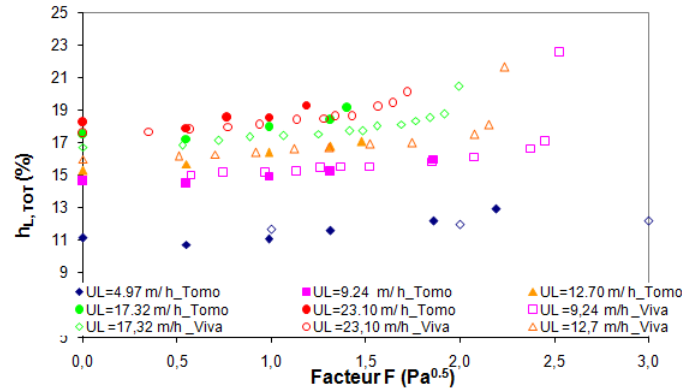


FIGURE 4.26: Rétention totale de liquide en fonction du Facteur F dans un lit de Katapak-SP12

On trouve également d'autres références pour ce type d'empilage avec des dimensions différentes dans la littérature :

- Götze et al [11](2001) : Rétention dynamique de liquide dans un lit de Katapak-SP12 dans une colonne de 0.25 m de diamètre ;
- Ratheesh et Kannan [24](2004) : Rétention dynamique de liquide dans un lit de Katapak-SP12 dans une colonne de 0.10 m de diamètre. L'élément de katapak-SP12 se différencie du nôtre (Figure 4.27a) par la présence d'une séparation au centre de chaque panier conduisant ainsi à la formation de 2 petits paniers à la place de chaque panier (Figure 4.27b).
- Behrens [3](2006) : Rétention dynamique de liquide dans un lit de Katapak-SP12 (Figure 4.27b) dans une colonne de 0.45 m de diamètre (même configuration que Ratheesh et Kannan).

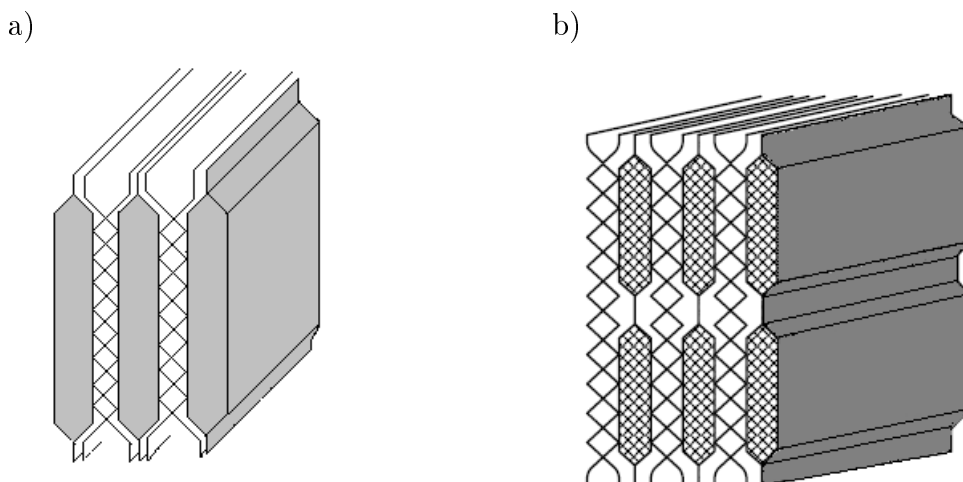


FIGURE 4.27: a) Elément de Katapak-SP12 utilisé dans ce travail ; b) Elément de Katapak-SP12 utilisé par Ratheesh et Kannan ainsi que Behrens

Pour permettre une comparaison avec ces différents auteurs, on doit disposer des valeurs de rétentions dynamique de liquide. Pour cela, on se base sur la définition de la rétention dynamique (section 4.5.1 : Définition de la rétention de liquide). Il suffit donc simplement de soustraire la rétention statique des valeurs de rétention totale de liquide afin d'obtenir les valeurs de rétention dynamique de liquide. On obtient ainsi la Figure 4.28. On observe que les valeurs obtenues à partir de la tomographie à rayons X sont également en accord avec la littérature. Les différences peuvent s'expliquer par le fait que les empilages utilisés possèdent des configurations et des diamètres différents.

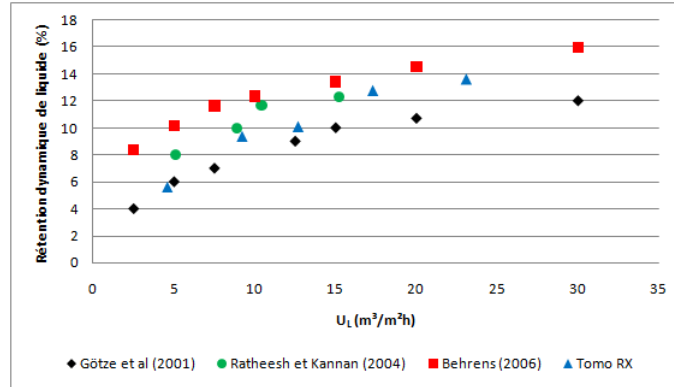


FIGURE 4.28: Comparaison des valeurs de rétention dynamique de liquide dans un lit de Katapak-SP12 obtenues à partir de la tomographie à rayons X avec ceux déterminées par d'autres auteurs

4.5.4 Répartition du liquide dans les éléments de Katapak-SP11 et SP12

Pour rappel, ces empilages possèdent deux zones différentes : une zone de réaction (paniers) et une zone de distillation (feuilles de Mellapak). Dans cette section, nous allons déterminer la répartition du liquide dans ces différentes zones pour les éléments de Katapak-SP11 et Katapak-SP12. Pour déterminer la rétention totale de liquide dans chaque panier pour une hauteur donnée, il suffit d'appliquer un masque correspondant à la section droite de chaque panier pour cette hauteur donnée. Ce masque permet de ne prendre en compte que les pixels correspondant à l'intérieur des paniers, en annulant tous les pixels en dehors des paniers. La valeur de rétention de liquide dans la zone de distillation est quant à elle obtenue en soustrayant de la rétention totale, la contribution relative aux paniers. Les Figures 4.29 et 4.30 représentent la fraction de rétention totale de liquide dans les paniers et dans la zone de distillation pour cinq débits de liquide différents respectivement pour le Katapak-SP11 et le Katapak-SP12. On constate que la rétention dans les paniers est plus importante que dans la zone de distillation. De plus ce comportement est plus marqué dans le cas du Katapak-SP11. En effet, la fraction de rétention de liquide dans les paniers représente plus ou moins 80 % de la rétention totale de liquide dans le cas du Katapak-SP11 et 60 à 70 % dans le cas du Katapak-SP12. Cela s'explique par la présence d'un plus grand nombre de paniers dans le Katapak-SP11 (4 au lieu de 3). La fraction de rétention de liquide dans la zone de distillation est plus importante dans le cas du Katapak-SP12, ce qui résulte d'un plus grand nombre de feuilles de Mellapak. On observe également que plus le débit de liquide augmente, plus la fraction de rétention de liquide dans la zone de distillation augmente. Cela s'explique par le fait que les paniers étant complètement remplis d'eau, le surplus de liquide s'écoule dans la zone de distillation.

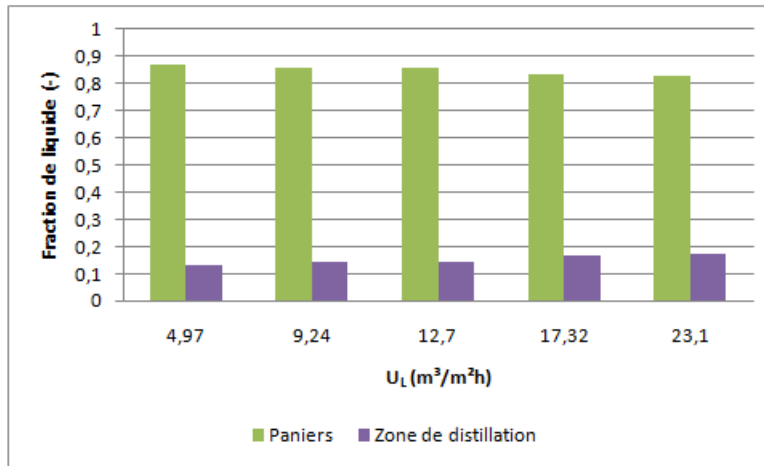


FIGURE 4.29: Fraction de rétention de liquide dans les paniers et zone de distillation du Katapak-SP11

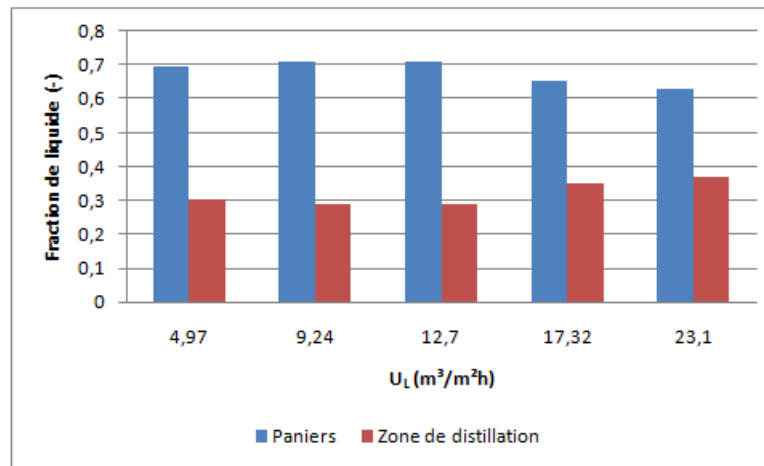


FIGURE 4.30: Fraction de rétention de liquide dans les paniers et zone de distillation du Katapak-SP12

4.5.4.1 Rétention totale de liquide dans les paniers de Katapak

La Figure 4.31 représente la rétention de liquide dans les paniers du Katapak-SP11 rapportée à la section totale de la colonne, pour 80 hauteurs et pour cinq vitesses superficielles de liquide. On observe que plus le débit de liquide est grand, plus la rétention de liquide est élevée. On constate également qu'à partir de 150 l/h (17,32 m/h), les paniers des trois premiers éléments de Katapak-SP11 commencent à être complètement remplis

d'eau. En effet, on observe que les courbes se confondent au delà de ce débit de 150 l/h. En ce qui concerne le dernier élément de Katapak-SP11 situé à une hauteur de 870 mm en partant du bas de la colonne, par contre, les paniers ne sont pas complètement remplis. Cela peut être dû à la présence du Mellapak au dessus de cet élément de Katapak-SP11. Les mêmes observations peuvent être faites pour le Katapak-SP12, comme on peut le voir sur la Figure 4.32.

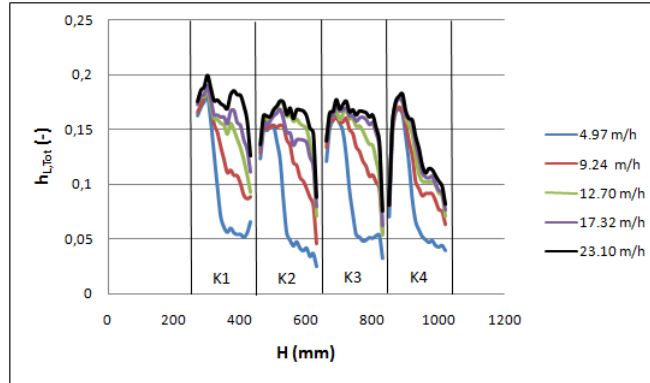


FIGURE 4.31: Rétention totale de liquide dans les paniers de Katapak-SP11 rapportée à la section totale de la colonne en fonction de la hauteur dans le lit d'empilage

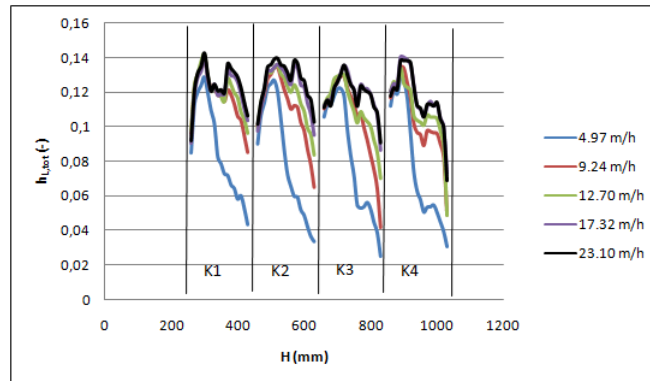


FIGURE 4.32: Rétention totale de liquide dans les paniers de Katapak-SP12 rapportée à la section totale de la colonne en fonction de la hauteur dans le lit d'empilage

4.5.4.2 Rétention totale de liquide dans la zone de distillation du Katapak

Les Figures 4.33 et 4.34 montrent les valeurs de la rétention totale dans la zone de distillation en fonction de la hauteur dans le lit de Katapak-SP11 et Katapak-SP12 pour cinq vitesses superficielles du liquide. On observe bien que la rétention dans la section de distillation augmente avec le débit de liquide. En effet, à partir d'un certain débit de liquide

les paniers sont complètement remplis d'eau et donc le surplus de liquide s'écoule dans la section de distillation. Plus on augmente le débit de liquide, plus le liquide s'écoulera en dehors des paniers qui sont totalement remplis d'eau. On observe également qu'au niveau de la jonction de deux éléments d'empilage, la rétention de liquide est plus importante, ce qui peut s'expliquer par la fermeture des paniers à ce niveau. En effet, la zone de distillation est plus importante que celle de réaction vu que la surface des paniers tend vers zéro à cette jonction. Le liquide sort donc des paniers et se retrouve dans la zone de distillation.

La rétention de liquide dans la zone de distillation du Katapak-SP12 est plus élevée que dans le cas du Katapak-SP11. Cela résulte du nombre plus important de feuilles de Mellapak dans le Katapak-SP12 (deux feuilles entre les paniers au lieu d'une feuille entre les paniers de Katapak-SP11). Ainsi l'aire occupée par la zone de distillation est plus importante dans le Katapak-SP12, ce qui entraîne donc une plus grande rétention de liquide.

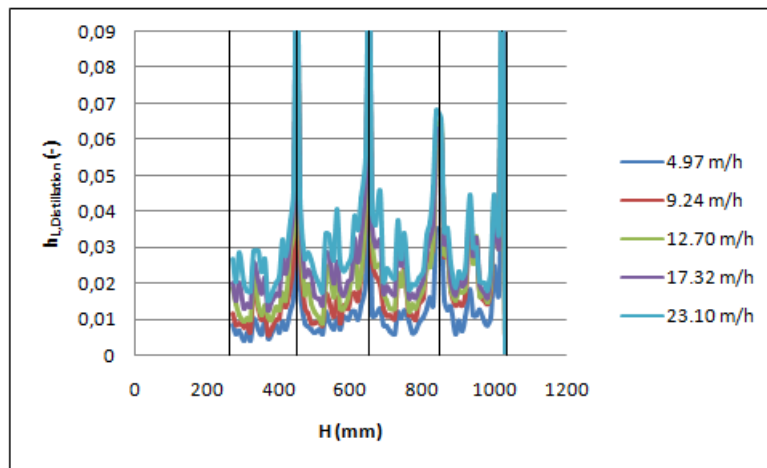


FIGURE 4.33: Rétention totale de liquide dans la zone de distillation de Katapak-SP11 rapportée à la section totale de la colonne

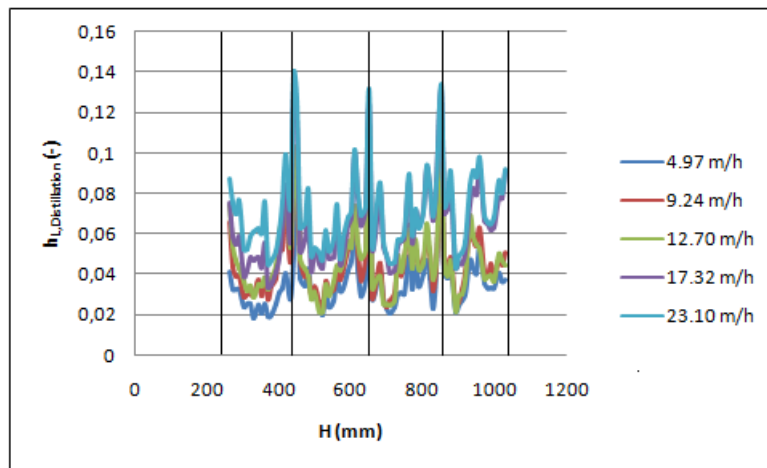


FIGURE 4.34: Rétention totale de liquide dans la zone de distillation de Katapak-SP12 rapportée à la section totale de la colonne

4.5.5 Mesure du point de charge de liquide dans les paniers de Katapak-SP

La tomographie à rayons X permet d'identifier le point de charge dans les paniers catalytiques à partir de mesures réalisées dans différentes sections droites de l'empilage. Le point de charge catalytique correspond au débit de liquide qui conduit au remplissage complet par du liquide de la porosité des paniers de Katapak-SP.

4.5.5.1 Katapak-SP11

La Figure 4.35 représente l'évolution de la rétention de liquide dans les paniers externes (ceux situés aux extrémités) et internes (situés au centre de l'élément) du Katapak-SP11, rapportée à la section des paniers, en fonction de la hauteur du lit d'empilage (distance par rapport au pied de la colonne) pour un faible débit de liquide ($U_L = 4.62 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$). On observe que le liquide n'est pas uniformément distribué dans les paniers. En effet, on observe qu'il y a plus de liquide dans les paniers externes que dans les paniers internes. Cette différence peut être expliquée par la présence du wall wiper, lequel limite l'écoulement du liquide le long de la paroi de la colonne et permet donc de redistribuer le liquide à l'intérieur de l'empilage, principalement dans les paniers externes.

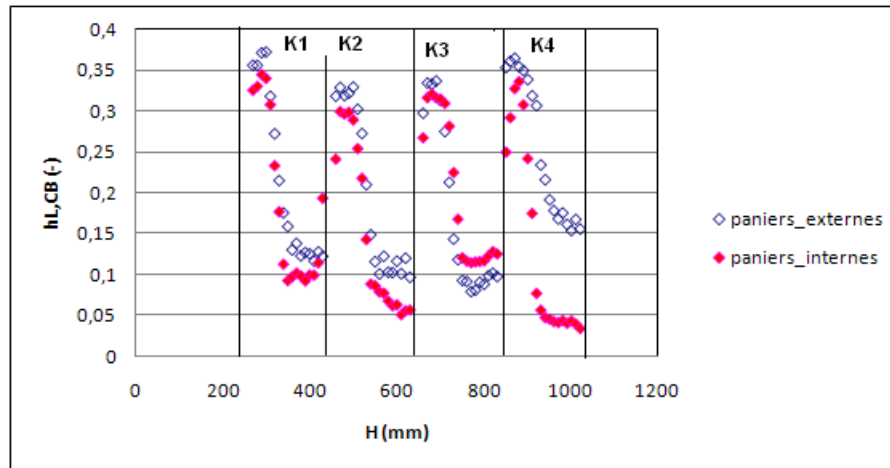


FIGURE 4.35: Rétention de liquide dans les paniers externes et internes du Katapak-SP11 pour U_L de $4.62 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$

A partir de cette figure, on peut également voir que les paniers ne sont pas totalement remplis de liquide, car la valeur de la rétention est beaucoup plus faible que la porosité des paniers de cet élément (38%). Les valeurs de rétention de liquide calculées sur chaque panier confirment qu'il y a plus de liquide dans les paniers externes que dans les paniers internes et que ce phénomène de mal distribution est présent pour chaque élément de Katapak-SP11 dans le lit d'empilage. Pour l'élément de Katapak-SP11 localisé en haut

du lit d'empilage juste en dessous de l'élément de Mellapak Plus 752Y (K4), on observe une mauvaise distribution de liquide dans les paniers externes et internes. Cela peut être dû à une mal distribution du liquide provenant de l'élément de Mellapak situé au-dessus du Katapak-SP11 (Figure 4.37). Quand on augmente le débit de liquide, la rétention de liquide dans les paniers augmente aussi, mais la différence entre les paniers externes et internes reste présente (Figure 4.36).

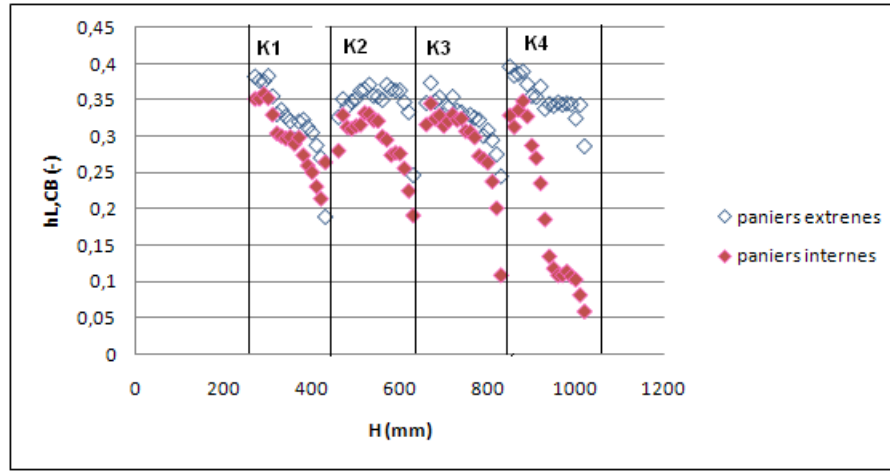


FIGURE 4.36: Rétention de liquide dans les paniers externes et internes du Katapak- SP11 pour U_L de $12.7 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$ et U_G de 0 m/s

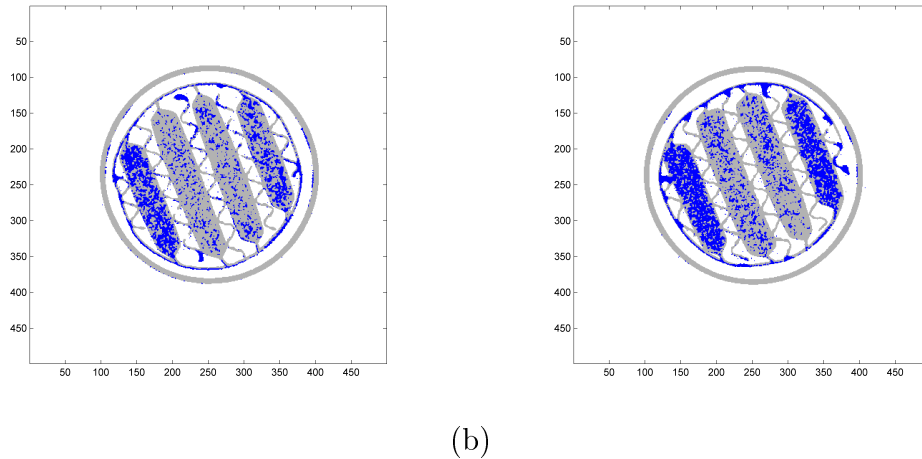


FIGURE 4.37: Images d'une section droite de Katapak-SP11 (K4) parcouru par un débit de liquide de 4.69 m/h situées à une distance de 690 mm (a) et 770 mm (b) du distributeur

Pour une vitesse superficielle de liquide (U_L) de $12.7 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$, les paniers externes sont presque totalement remplis d'eau, de sorte que l'on s'approche du point de charge

catalytique liquide. La Figure 4.38 représente l'influence d'un écoulement à contre-courant de gaz sur la distribution du liquide dans les paniers du Katapak-SP11 pour $U_L = 12.7 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$ et $U_G = 1.22 \text{ m/s}$.

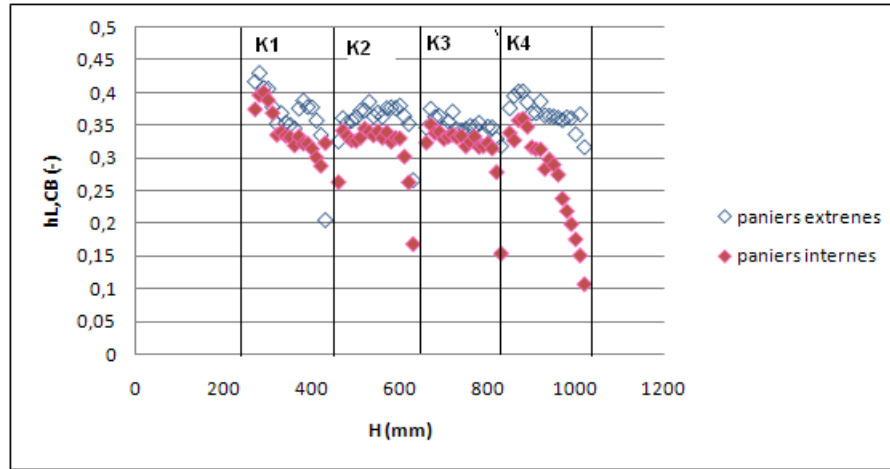


FIGURE 4.38: Rétention de liquide dans les paniers externes et internes du Katapak- SP11 pour U_L de $12.7 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$ et U_G de 1.22 m/s

L'écoulement de gaz semble forcer le liquide à rentrer dans les paniers et le point de charge de liquide dans les paniers peut être atteint plus rapidement, c'est-à-dire pour des débits de liquide moins élevés.

4.5.5.2 Katapak-SP12

Les Figures 4.39 et 4.40 montrent que le Katapak-SP12 présente un comportement similaire au Katapak-SP11. En effet, la rétention de liquide dans les paniers externes et internes du Katapak-SP12 suivent la même tendance que ceux du Katapak-SP11. Dans les Figures 4.39 et 4.40, on peut voir que les deux paniers externes sont irrigués de la même manière pour des débits de liquide faibles ou élevés. Les paniers externes sont remplis d'eau plus rapidement que le panier interne.

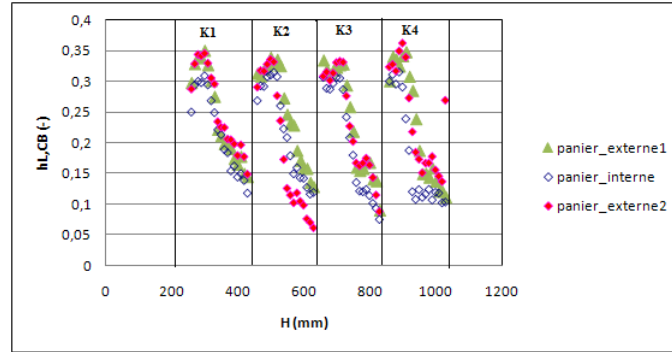


FIGURE 4.39: Rétention de liquide dans les paniers externes et internes du Katapak-SP12 pour U_L de 4.6 m³/m²h

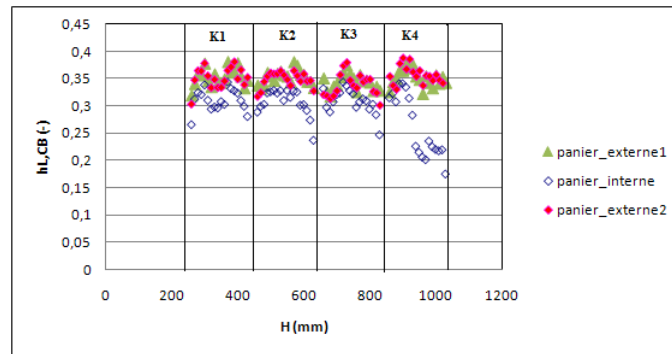


FIGURE 4.40: Rétention de liquide dans les paniers externes et internes du Katapak-SP12 pour U_L de 23.1 m³/m²h

4.5.5.3 Synthèse

Les résultats obtenus par tomographie à rayons X suggèrent que le point de charge dans les paniers catalytiques n'a pas une valeur unique car ce dernier dépend de la position verticale dans l'élément et dans la colonne et aussi de la position du panier (externe ou interne). En négligeant les effets du gaz pour les deux types d'empilage (Katapak-SP11 et Katapak-SP12), on peut dire que les paniers externes se remplissent complètement d'eau à partir d'un débit de liquide de 12.7 m³/m²h, tandis que les paniers internes ne se remplissent complètement d'eau que pour un débit de liquide supérieur ou égal à 17.3 m³/m²h (110 l/h) dans le cas du Katapak-SP11 et supérieur ou égal à 23.1 m³/m²h (200 l/h) dans le cas du Katapak-SP12.

4.5.6 Influence de la viscosité du liquide

L'influence de la viscosité du liquide a été étudiée sur base de mesures de rétention de liquide sur le Katapak-SP11. Le liquide utilisé est une solution de glycérine avec une viscosité de 10 Centipoises. La configuration de la colonne est restée la même que dans le cas du système eau-air. Les débits de liquide sont de 3.94, 7.04, 17.08 et 20.7 m³/m²h. La gamme de débit de gaz est de 0 à 2 m/s. La Figure 4.41 représente la rétention globale de liquide en fonction du débit de liquide pour la solution de glycérine et pour l'eau.

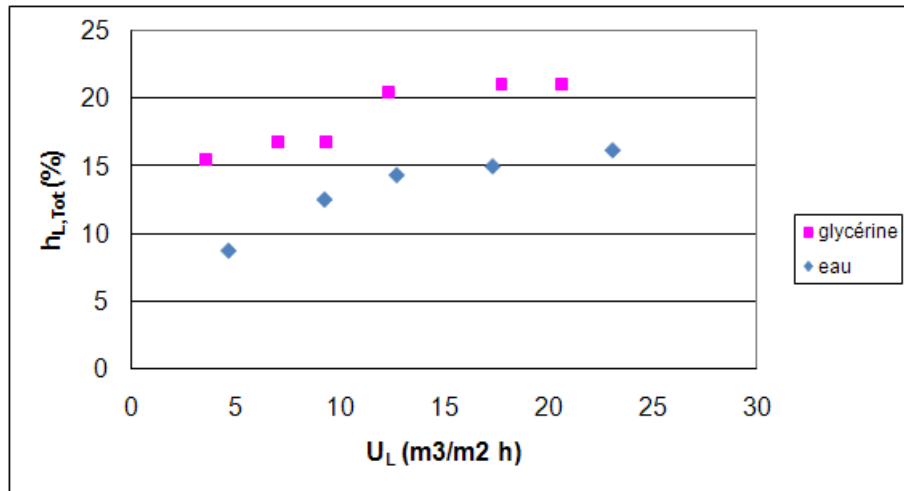


FIGURE 4.41: Rétention de glycérine et rétention d'eau dans un lit de Katapak-SP11 en fonction du débit de liquide

On constate tout d'abord que les deux profils de rétention de liquide ont la même allure. Cependant, on observe que la rétention de glycérine est plus élevée que la rétention d'eau. Cela s'explique par la viscosité plus élevée de la solution de glycérine, qui a tendance à être plus retenue par l'empilage que l'eau. En effet, une viscosité plus élevée favorise les forces de résistance à l'écoulement du liquide, conduisant à une plus grande quantité de liquide retenue.

La Figure 4.42 compare les valeurs de rétention obtenues à partir de la tomographie à ceux obtenus par la méthode de pesée réalisées à l'université de Pise sur le même empilage. Les valeurs obtenues par la tomographie à rayons X sont en très bon accord avec celles obtenus par la méthode de pesée. Les petites différences peuvent s'expliquer par des fluctuations expérimentales, dues notamment à des variations de la viscosité avec la température (non régulée).

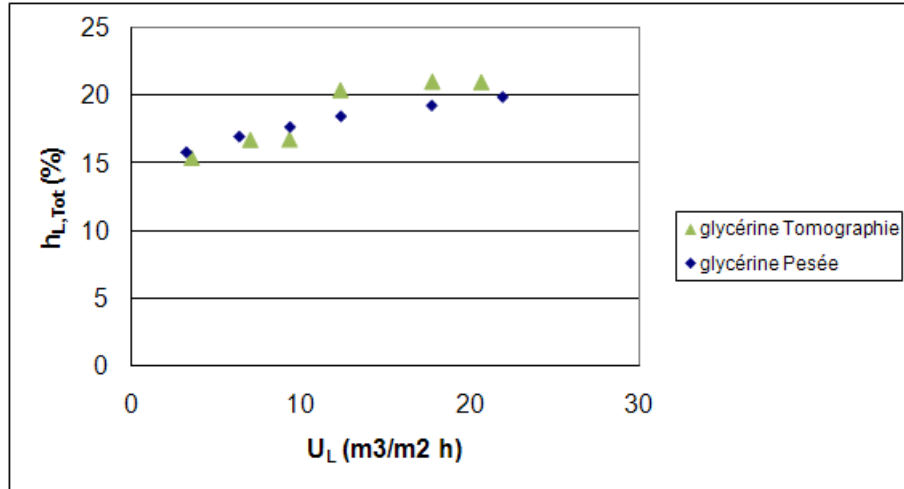


FIGURE 4.42: Rétention de glycérine obtenue par tomographie et par pesée dans un lit de Katapak-SP11 en fonction du débit de liquide

4.5.7 Pertes de charge

La perte de charge a été mesurée entre le bas et le haut du lit d'empilage à l'aide d'un tube en U rempli d'eau. La procédure choisie consiste à fixer un débit de liquide et d'augmenter progressivement la vitesse superficielle du gaz jusqu'à atteindre l'engorgement et cela pour la gamme de vitesse superficielle de liquide allant de 0 à $31.85 \text{ m}^3/\text{m}^2\text{h}$. L'évolution de la perte de charge est représentée sur la Figure 4.43.

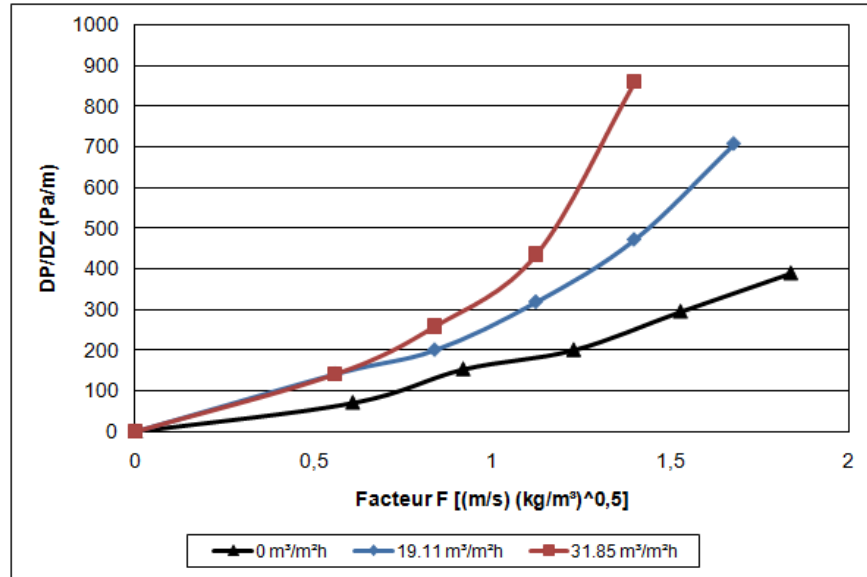


Figure 4.43: Evolution de la perte de charge avec le facteur F dans un lit de Katapak-SP12

On observe que la perte de charge augmente logiquement avec les vitesses superficielles du gaz et du liquide. Dès que l'on approche de l'engorgement, la perte de charge devient très importante, ce qui se traduit par un changement de pente de la courbe. La Figure 4.44 compare nos résultats à ceux trouvés dans la littérature pour différents débits de gaz sans écoulement de liquide. Nos résultats sont en accord avec ceux de la littérature.

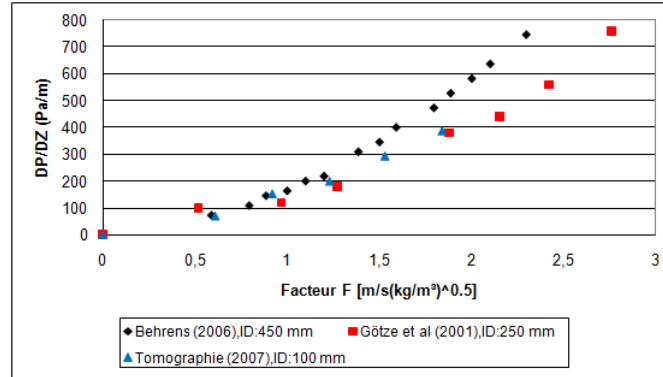


Figure 4.44: Pertes de charge dans un lit de Katapak-SP12 à débit de liquide nul

La Figure 4.45 reprend la perte de charge mesurée dans différents types de lit (4 éléments de Katapak-SP12, 4 éléments de Mellapak 752Y et Hybride (partant du bas de la colonne: 1 élément de Mellapak Plus 752Y, 4 éléments de Katapak-SP12 et 3 éléments de Mellapak Plus 752Y)) et pour une vitesse superficielle de liquide fixe de 17.30 m/h. On constate que la perte de charge dans un lit de Katapak est plus élevée que celle dans un lit de Mellapak, tandis que la perte de charge mesurée dans un lit hybride comprenant 4 Mellapak et 4 Katapak-SP12 se situe entre les deux autres lits. La Figure 4.46 montre que ces résultats sont en accord avec ceux de Behrens et Olujic[2](2006).

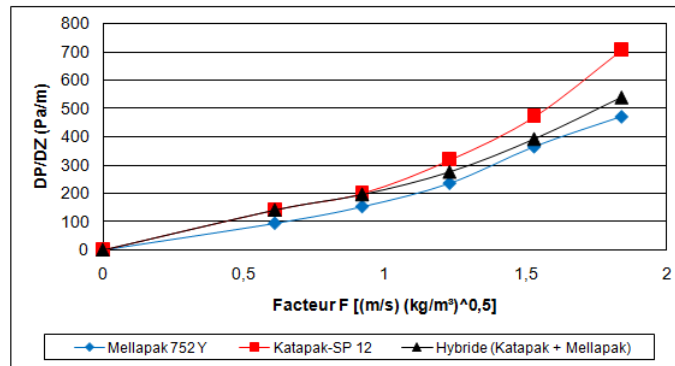


Figure 4.45: Pertes de charge pour différents types de lit: Katapak-SP12, Mellapak Plus 752Y et Hybride (Katapak-SP12 + Mellapak Plus 752Y) pour $U_L = 17.30$ m/h

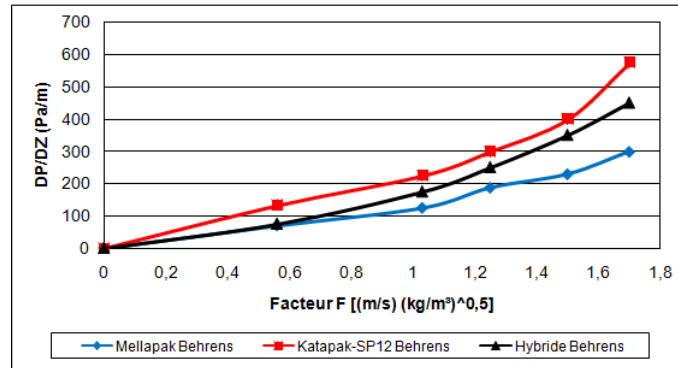


Figure 4.46: Pertes de charge pour différents types de lit: Katapak-SP12, Mellapak Plus 752Y et Hybride (Katapak-SP12 + Mellapak Plus 752Y) pour $U_L = 10$ m/h (Olujic et Behrens)

4.5.8 Aire interfaciale gaz-liquide

La mesure de l'aire interfaciale est très importante car elle intervient dans les relations exprimant les transferts de matière entre les phases mises en jeu. De plus, elle détermine la qualité du contact entre les deux phases (liquide et gaz) et donc la qualité du transfert de matière.

Méthode

La méthode utilisée pour la détermination de l'aire spécifique de l'empilage sec peut être adaptée à la détermination de l'aire interfaciale gaz-liquide des empilages irrigués. Les pixels remplis d'eau (valeur du pixel = 2) et au contact d'au moins un pixel de gaz (valeur du pixel = 0) sont supposés appartenir à l'interface gaz-liquide. L'aire interfaciale gaz-liquide a été obtenue en sommant les contributions de tous les pixels appartenant à l'interface gaz-liquide.

Mellapak Plus 752Y

La Figure 4.47 montre une image d'une section droite d'un élément de Mellapak Plus 752Y. Les pixels de gaz (valeur de pixel = 0) sont en blanc, les pixels de solide (valeur du pixel = 1) sont en gris et les pixels de liquide (valeur du pixel = 2) sont en bleu.

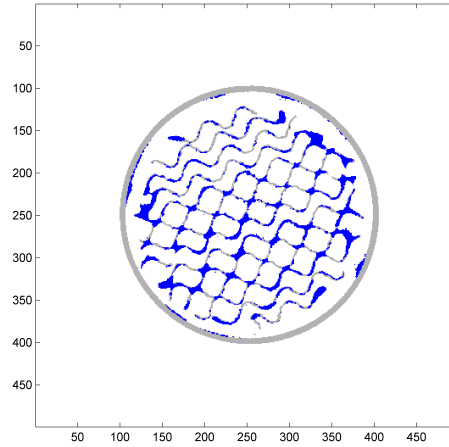


FIGURE 4.47: Image d'une section droite du Mellapak Plus 752Y parcouru par un débit de liquide ($U_L = 23.10\text{m/h}$)

La Figure 4.48 représente l'aire interfaciale gaz-liquide en fonction de la vitesse superficielle du liquide. On observe que l'aire interfaciale augmente bien avec la vitesse superficielle du liquide. Pour des vitesses de liquide élevées, on constate que plus de 80% de la surface de l'empilage est mouillée. Ces valeurs d'aire interfaciale gaz-liquide ont été comparées avec des modèles dans le chapitre 5 : Modélisation.

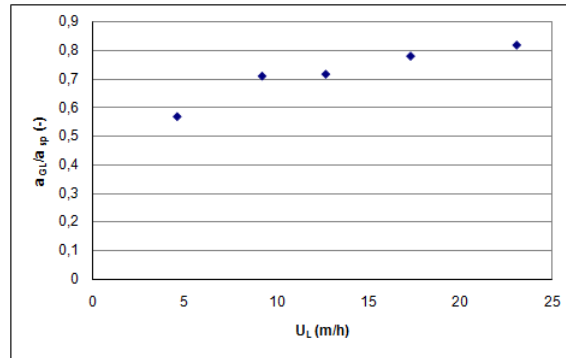


FIGURE 4.48: Valeurs d'aire interfaciale Gaz-liquide du Mellapak-Plus 752Y en fonction de la vitesse superficielle du liquide, obtenues à partir de la tomographie à rayons X

Katapak-SP12

La Figure 4.49 montre une image d'une section droite d'un élément de Katapak-SP12 irrigué. Les pixels de gaz (valeur de pixel = 0) sont en blanc, les pixels de solide (valeur

du pixel = 1) sont en gris et les pixels de liquide (valeur du pixel =2) sont en bleu. On observe que les paniers sont presque complètement remplis d'eau, confirmant que leur surface externe représente la seule contribution des paniers au contact gaz-liquide. C'est pourquoi, l'intérieur des paniers est masqué (en gris) dans le but de visualiser seulement l'écoulement de liquide à la surface de ceux-ci et l'aire interfaciale correspondante, comme représenté dans la Figure 4.50.

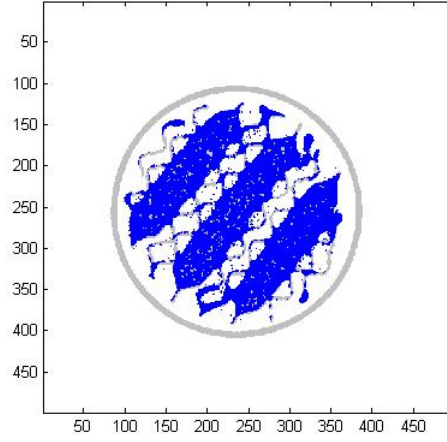


FIGURE 4.49: Image d'une section droite du Katapak-SP12 irrigué. ($U_L = 31\text{m/h}$; $F_G = 1.53 \text{ m/s } (\text{kg/m}^3)^{0.5}$)

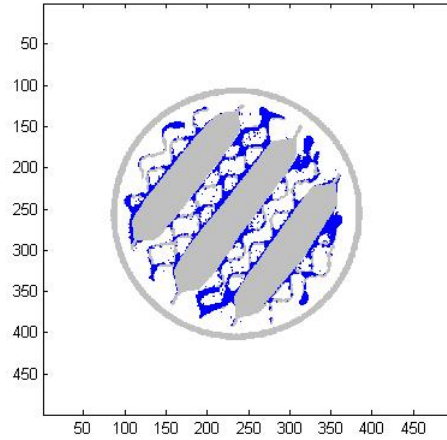


FIGURE 4.50: Image d'une section droite du Katapak-SP12 irrigué dont les paniers sont masqués en gris. ($U_L = 31\text{m/h}$; $F_G = 1.53 \text{ m/s } (\text{kg/m}^3)^{0.5}$)

Les Figures 4.51, 4.52, 4.53, 4.54, 4.55, 4.56 montrent les distributions de liquide et de gaz dans des sections droites du lit d'empilage à deux hauteurs différentes et pour trois débits de liquide et de gaz. On observe que le liquide tend à s'accumuler aux points de contact entre les feuilles ondulées et aux points de contact entre les feuilles ondulées et les paniers. La quantité de liquide (la rétention de liquide) augmente clairement avec la vitesse superficielle du liquide. Les Figures 4.52, 4.54 et 4.56 correspondent à des sections droites où un wall wiper est présent. On observe clairement une accumulation de liquide sur le wall wiper. Ce comportement est amplifié quand on augmente la vitesse superficielle de liquide. Les Figures 4.51, 4.52, 4.53 et 4.54 correspondent à des conditions opératoires sous le point de charge catalytique de l'empilage : il n'y a pas d'effet significatif de la vitesse du gaz (Facteur F). Les Figures 4.55 et 4.56 correspondent aux conditions du point de charge. Il y a une augmentation significative de liquide surtout dans les zones proches du wall wiper, qui pourrait initier un engorgement si la vitesse du gaz augmente.

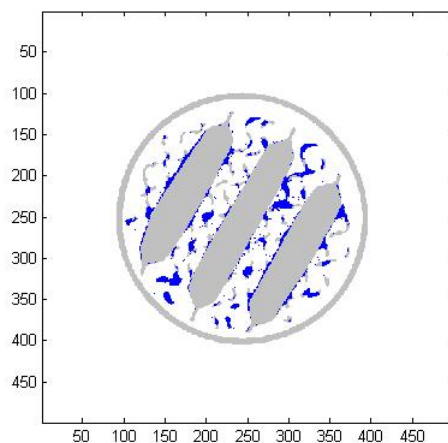


FIGURE 4.51: Image d'une section droite du Katapak-SP12 irrigué sans wall wiper. ($U_L = 12\text{m/h}$; $F_G = 0.61\text{ m/s (kg/m}^3)^{0.5}$)

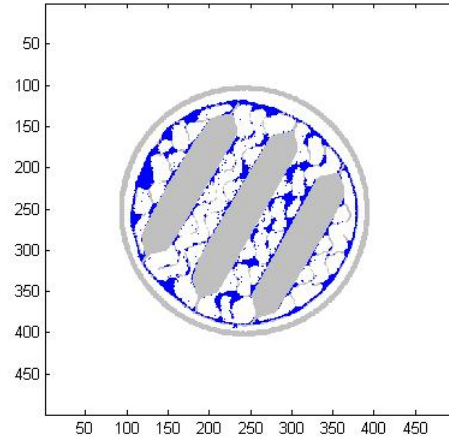


FIGURE 4.52: Image d'une section droite du Katapak-SP12 avec wall wiper. ($U_L = 12\text{m/h}$; $F_G = 0.61 \text{ m/s (kg/m}^3)^{0.5}$)

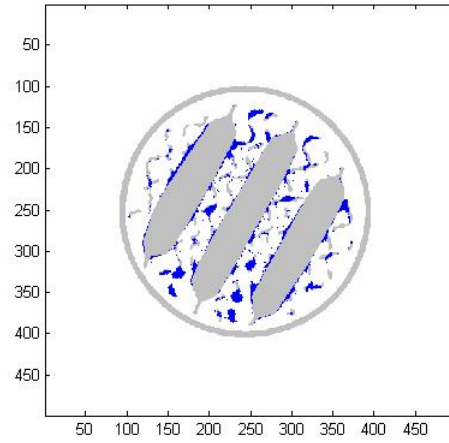


FIGURE 4.53: Image d'une section droite du Katapak-SP12 sans wall wiper. ($U_L = 12\text{m/h}$; $F_G = 1.53 \text{ m/s (kg/m}^3)^{0.5}$)

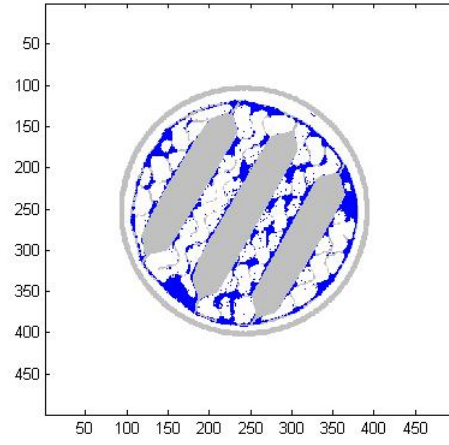


FIGURE 4.54: Image d'une section droite du Katapak-SP12 avec wall wiper. ($U_L = 12\text{m/h}$; $F_G = 1.53 \text{ m/s (kg/m}^3)^{0.5}$)

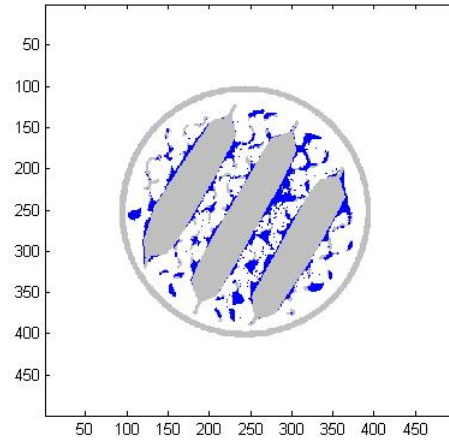


FIGURE 4.55: Image d'une section droite du Katapak-SP12 sans wall wiper. ($U_L = 25\text{m/h}$; $F_G = 1.53 \text{ m/s (kg/m}^3)^{0.5}$)

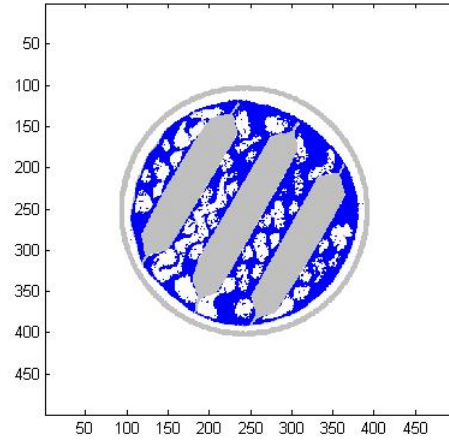


FIGURE 4.56: Image d'une section droite du Katapak-SP12 avec wall wiper. ($U_L = 25 \text{ m/h}$; $F_G = 1.53 \text{ m/s (kg/m}^3)^{0.5}$)

L'analyse de la distribution de la rétention liquide (Figures 4.10, 4.11 et 4.12) a montré que le liquide n'est pas uniformément distribué sur toute la hauteur du lit d'empilage, et il en est de même pour l'aire interfaciale gaz-liquide. Cette distribution non uniforme est confirmée dans la Figure 4.57 (courbes du milieu et du haut), qui montre aussi que l'aire interfaciale gaz-liquide est corrélée à l'aire spécifique de l'empilage. Comme représenté dans la Figure 3.27, les maxima de l'aire spécifique correspondent à la présence de wall wiper, lesquels sont séparés entre eux approximativement de 7 cm. Cette corrélation a été vérifiée quel que soit le débit de liquide.

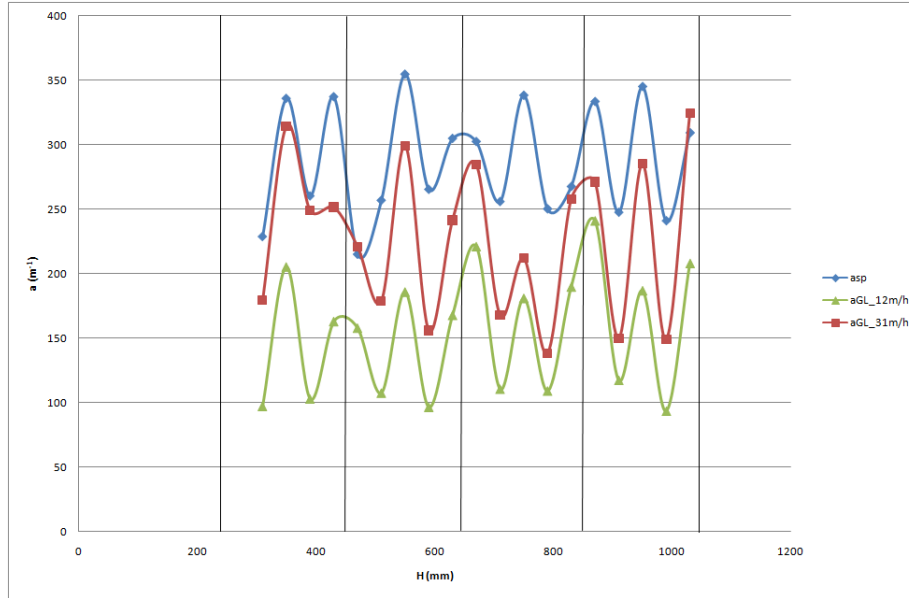


FIGURE 4.57: Aire spécifique et aire interfaciale gaz-liquide pour 19 sections droites du lit de Katapak-SP12 et pour deux débits de liquides : $U_L = 25$ et 31 m/h ($F_G = 1.23$ m/s $(\text{kg/m}^3)^{0.5}$)

Les valeurs moyennes de l'aire interfaciale gaz-liquide sur la hauteur totale du lit d'empilage sont comprises entre 150 et 250 m^2 , selon les conditions opératoires.

La qualité du contact entre le gaz et le liquide est souvent représentée par le rapport a_{GL}/a_{SP} entre l'aire interfaciale a_{GL} et l'aire spécifique a_{SP} . La valeur de ce rapport peut être moyennée sur les quatre éléments de Katapak-SP12 constituant le lit d'empilage pour chacune des conditions opératoires. La Figure 4.58 représente l'évolution de la moyenne de ce rapport en fonction de la vitesse du gaz (Facteur F) pour différents débits de liquide. Chaque point correspond à une valeur moyennée sur 19 sections droites. Logiquement, une augmentation de la vitesse du liquide a un effet positif sur la qualité du contact entre le liquide et le gaz. Cependant, aucune augmentation significative de l'aire interfaciale n'a été observée quand la vitesse superficielle du liquide est supérieure à 25 m/h. Ce comportement pourrait être expliqué par un phénomène d'engorgement local qui aurait lieu préférentiellement dans les sections droites où un wall wiper est présent (Figure 4.56). Quand la vitesse superficielle du liquide augmente, les films de liquide voisins se touchent et entraîne une réduction de l'aire interfaciale gaz-liquide. Cette réduction pourrait contrebalancer l'augmentation de l'aire interfaciale observée dans les sections droites sans wall wiper où la rétention de liquide peut augmenter avec le débit de liquide sans problème d'engorgement (Figure 4.55).

La Figure 4.58 montre les valeurs du rapport a_{GL}/a_{SP} en fonction du Facteur F_G pour différents débits de liquide. Le point de charge pour chacun des débits de liquide y est représenté par un cercle noir. On observe que pour des faibles valeurs du facteur F_G ,

l'écoulement du gaz a peu d'influence sur le rapport a_{GL}/a_{SP} . Tandis que dès que l'on se rapproche du point de charge (cercle noir), ce rapport augmente. En effet, ce point de charge correspond au débit de gaz suffisant pour commencer à ralentir l'écoulement du liquide et à le retenir, entraînant ainsi une augmentation de la rétention de liquide et aussi une augmentation de l'aire interfaciale gaz-liquide (a_{GL}).

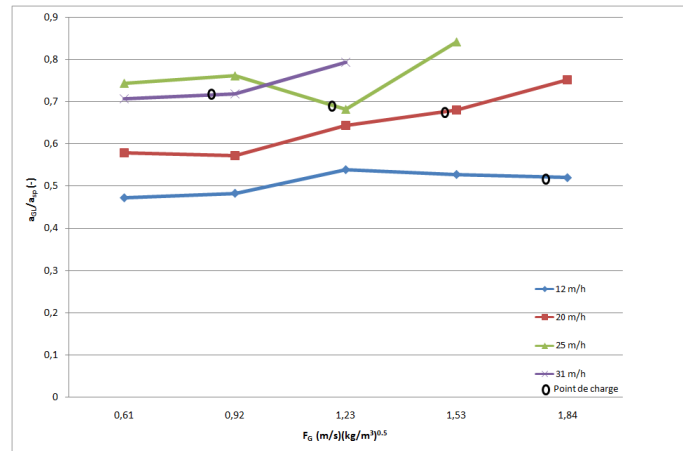


FIGURE 4.58: Evolution du rapport a_{GL}/a_{SP} en fonction de la vitesse du gaz (Facteur F) pour différentes vitesses superficielles du liquide

Chapitre 5

Modélisation

5.1 Pertes de charge

Nous avons testé deux types de modèles pour la détermination de la perte de charge à débit de liquide nul:

- Modèle proposé par Ratheesh et de Kannan[24] (2004) ;
- Modèle proposé par Behrens (Modèle de Delft) [3] (2006).

5.1.1 Modèle de Ratheesh et Kannan

Ce modèle fait intervenir un facteur de friction. La relation est la suivante :

$$\frac{\Delta P}{\Delta Z_{sec}} = \frac{f \rho_g u_{ge}^2}{d_{eq}} \quad (5.1)$$

avec :

- $\frac{\Delta P}{\Delta Z_{sec}}$: perte de charge pour un débit nul de liquide (Pa/m)
- f : facteur de friction (-) ;
- ρ_g : Masse volumique du gaz (kg/m³) ;
- u_{ge} : vitesse effective du gaz (m/s) ;
- d_{eq} : diamètre équivalent qui vaut $4\varepsilon_{dist}/a$ (m).

Le facteur de friction est fonction du nombre de Reynolds. Lorsque $Re < 1500$:

$$f = \frac{2.293}{Re_g^{0.308}} \quad (5.2)$$

et lorsque $Re > 1500$, on utilise l'expression suivante:

$$f = \frac{0.628}{Re_g^{0.131}} \quad (5.3)$$

où le nombre de Reynolds se détermine par:

$$Re_g = \frac{d_{eq} * u_g * \rho_g}{\mu_g} \quad (5.4)$$

Les Figures 5.1, 5.2 et 5.3 comparent les valeurs prédits par le modèle aux valeurs expérimentales, pour les trois configurations étudiées : Katapak SP12, Mellapak 752 Y et hybride.

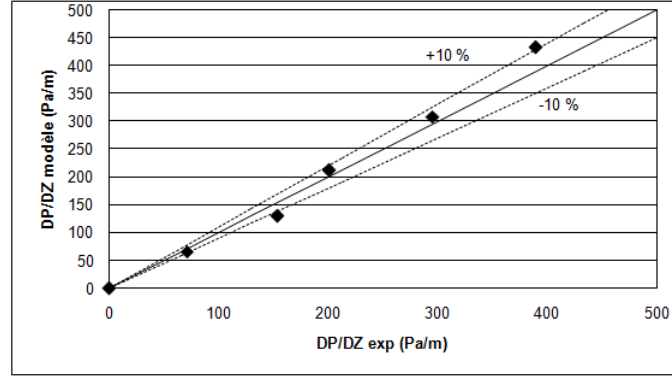


Figure 5.1: Prédiction de la perte de charge par le modèle de Kannan et Ratheesh : empilage Katapak- SP12

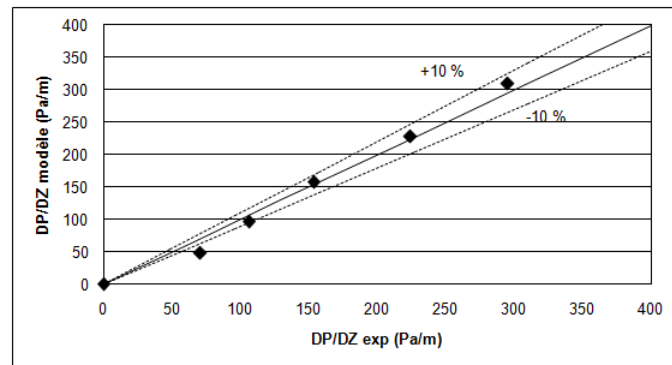


Figure 5.2: Prédiction de la perte de charge par le modèle de Kannan et Ratheesh : empilage Mellapak Plus 752Y

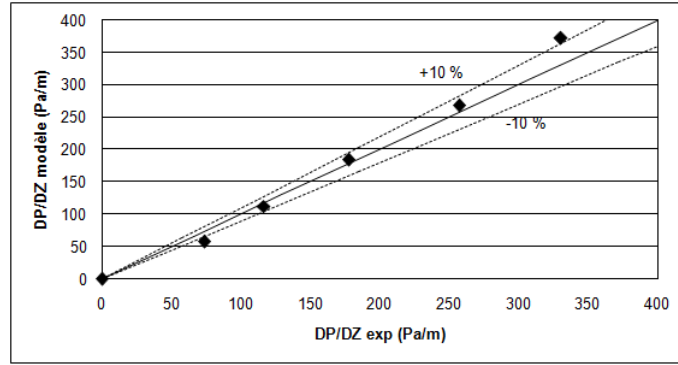


Figure 5.3: Prédiction de la perte de charge par le modèle de Kannan et Ratheesh : lit hybride (Mellapak Plus 752Y + Katapak- SP12)

Ces trois figures montrent que le modèle rend bien compte des résultats expérimentaux avec une erreur de $\pm 10\%$ pour les trois types de lit d'empilage.

5.1.2 Modèle de Behrens

Le deuxième modèle est le modèle dit de « Delft », proposé par Behrens[3]. Ce modèle de perte de charge fait une distinction entre les canaux ouverts et les canaux fermés dans les empilages de Katapak-SP12.

5.1.2.1 Les canaux ouverts

Dans les canaux ouverts, Behrens propose de déterminer la perte de charge par la relation suivante :

$$\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{oc} = \Gamma \zeta_{tot,oc} \frac{\rho_g u_{ge,oc}^2}{2 * h_{pb}} \quad (5.5)$$

avec :

- $\frac{\Delta P}{\Delta Z}$: Perte de charge pour un débit nul de liquide (Pa/m) ;
- Γ : Ratio de la surface de la section droite de la zone de distillation sur la surface de la section droite totale du lit d'empilage(-) ;
- ρ_g : Masse volumique du gaz (kg/m^3) ;
- $u_{ge,oc}$: Vitesse effective du gaz dans les canaux ouverts (m/s) ;
- $\zeta_{tot,oc}$: coefficient de friction total (-) ;
- h_{pb} : hauteur d'un élément de Katapak-SP12 (m);

Ce modèle considère qu'il existe trois contributions pour le coefficient de friction: l'interaction gaz-gaz $\zeta_{GG,oc}$, l'interaction gaz-liquide $\zeta_{GL,oc}$ et la friction due au changement de direction $\zeta_{DC,oc}$. On obtient donc la relation suivante:

$$\zeta_{tot,oc} = \zeta_{GG,oc} + \zeta_{GL,oc} + \zeta_{DC,oc} \quad (5.6)$$

En l'absence de débit liquide, l'interaction gaz-liquide s'annule et on obtient la relation suivante :

$$\zeta_{tot,oc} = \zeta_{GG,oc} + \zeta_{DC,oc} \quad (5.7)$$

L'interaction gaz-gaz est principalement fonction de l'angle d'ondulation ($a_c : 41^\circ$) des feuilles de Mellapak Plus 752Y qui délimitent les canaux ouverts dans l'empilage Katapak-SP12 :

$$\zeta_{GG,oc} = (1 - \phi) * 0.722 * (\cos(a_c))^{3.14} * \frac{l_{pb}}{d_{hG}} \quad (5.8)$$

avec:

- ϕ : paramètre géométrique donné par : $\frac{2s}{b+2s}$ où b est la base des ondulations des feuilles de Mellapak et s est la longueur du côté des ondulations;
- l_{pb} : longueur totale des canaux triangulaires d'écoulement de gaz dans le lit d'empilage (m).
- d_{hG} : diamètre hydraulique des canaux pour l'écoulement de gaz ;

$$d_{hG} = \frac{\frac{(bh-2\delta s)^2}{bh}}{\left[\left(\frac{(bh-2\delta s)}{2h} \right)^2 + \left(\frac{(bh-2\delta s)}{b} \right)^2 \right]^{0.5} + \frac{bh-2\delta s}{2h}} \quad (5.9)$$

Dans le cas d'un écoulement de gaz sans liquide, il n'y a pas de film de liquide ($\delta = 0$) et l'expression du diamètre hydraulique devient donc :

$$d_{hG} = \frac{bh}{\left[\left(\frac{b}{2} \right)^2 + h^2 \right]^{0.5} + \frac{b}{2}} \quad (5.10)$$

où :

- δ : épaisseur du film de liquide (m) ;
- b : base des ondulations (m) ;
- h : hauteur des ondulations (m) ;

– s : longueur d'un côté des ondulations (m) ;
 La longueur totale des canaux triangulaires, l_{pb} , est donnée par :

$$l_{pb} = n_{pe} * l_{pe} \quad (5.11)$$

$$l_{pe} = \frac{h_{pe} - h_{vert}}{\sin(a_c)} + h_{vert} \quad (5.12)$$

où

- h_{pe} : hauteur d'un élément d'empilage (=0.2m) ;
- h_{vert} : hauteur totale de la partie verticale des canaux (=0.02m) ;
- n_{pe} : nombre d'empilage dans le lit d'empilage (-) ;
- a_c : angle d'ondulation des feuilles de Mellapak Plus 752Y (41°) ;
- l_{pe} : longueur des canaux triangulaires d'écoulement de gaz (m) ;

L'interaction gaz-liquide n'est évidemment pas prise en compte dans le cas où il n'y a pas d'écoulement de liquide. Cependant, on doit tenir compte de la dernière contribution de l'équation 5.6 qui correspond au changement de direction de l'écoulement de gaz dans les canaux ouverts via l'expression suivante :

$$\zeta_{DC,oc} = n_{pe} * (\xi_{bulk} + \psi \xi_{wall,oc}) \quad (5.13)$$

où

- ξ_{bulk} : facteur de friction due au changement de direction du gaz à la transition entre deux éléments d'empilage;
- ψ : fraction de canaux se terminant à la paroi de la colonne;
- $\xi_{wall,oc}$: facteur de friction à la paroi de la colonne. Le facteur de friction à la paroi dans le cas d'un écoulement de gaz sans liquide est déterminé par la relation suivante:

$$\xi_{wall,oc} = \frac{4715 * (\cos(a_c))^{0.445}}{Re_{Ge,oc}} \quad (5.14)$$

La fraction ψ est fonction du diamètre de la colonne ainsi que de la hauteur de l'empilage et de l'angle d'ondulation des feuilles de Mellapak. Connaissant la valeur de ce facteur pour un diamètre de 45 cm (Behrens[3],2006), on a pu déterminer en première approximation la valeur de ce paramètre pour un diamètre de 10 cm de colonne par règle de trois.

Le facteur de friction due au changement de direction est déterminé par :

$$\xi_{bulk} = 1.76 * (\cos(a_{DC}))^{1.63} \quad (5.15)$$

où l'angle de changement de direction est donné par :

$$a_{DC} = \frac{a_c + 90}{2} \quad (5.16)$$

5.1.2.2 Les canaux fermés

Ce sont les canaux qui sont en contact avec les paniers contenant les billes de verre. Pour ce type de canaux, le modèle de « Delft » suppose que la perte de charge sans débit de liquide dépend du changement de direction et du changement du moment. Cette dernière contribution est due au fait que les canaux n'ont pas un diamètre constant sur toute la hauteur de l'empilage.

L'expression proposée pour la perte de charge dans les canaux fermés est:

$$\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{cc} = \Gamma \zeta_{tot,cc} \frac{\rho g u_{ge,cc}^2}{2 * h_{pb}} \quad (5.17)$$

où le coefficient de friction totale est donné par :

$$\zeta_{tot,cc} = \zeta_{DC,cc} + \zeta_{MC,cc} \quad (5.18)$$

Le coefficient de friction dû au changement de direction est identique à celui dans le cas des canaux ouverts seulement lorsqu'il n'y a pas de débit de liquide:

$$\zeta_{DC,cc} = n_{pe} * (\xi_{bulk} + \psi \xi_{wall,cc}) = \zeta_{DC,oc} \quad (5.19)$$

Le coefficient de friction dû au changement de moment est défini par la relation suivante :

$$\zeta_{MC} = 1.05 * \left(\frac{t_R}{h}\right)^2 + 0.45 * \left(1 - \frac{h}{h - t_R}\right) \quad (5.20)$$

où:

– t_R : épaisseur des paniers (m) ;

- h : hauteur des ondulations (m) ;

Comme on peut le voir sur les Figures 5.4, 5.5 et 5.6, ce modèle permet de rendre compte des résultats expérimentaux avec une erreur inférieure à 15 %.

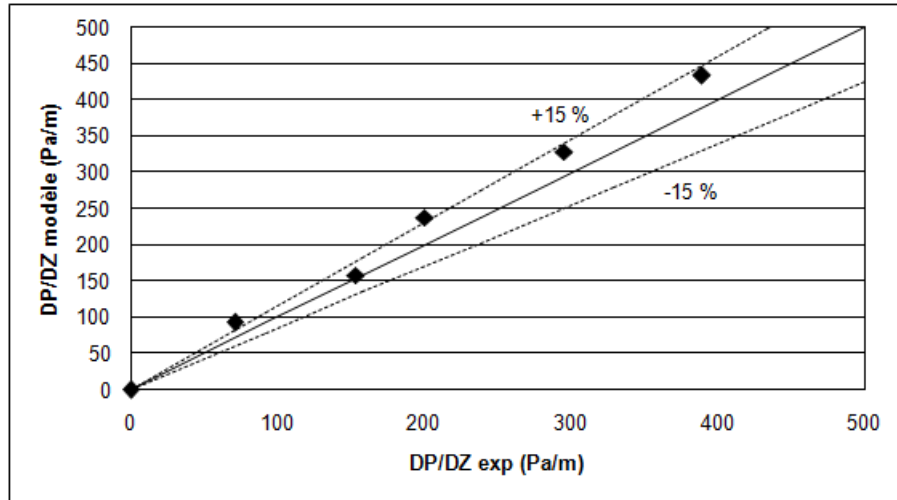


Figure 5.4: Prédiction de la perte de charge par le modèle de Behrens : Katapak-SP12

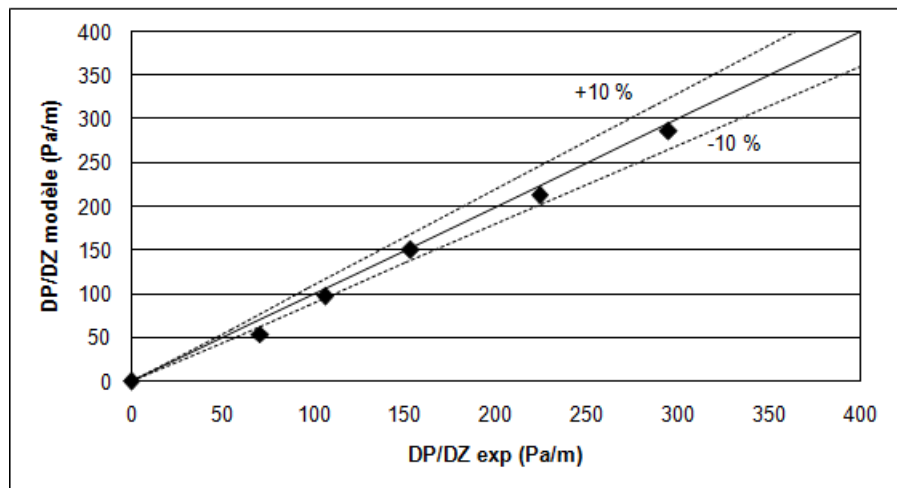


Figure 5.5: Prédiction de la perte de charge par le modèle de Behrens : Mellapak Plus 752Y

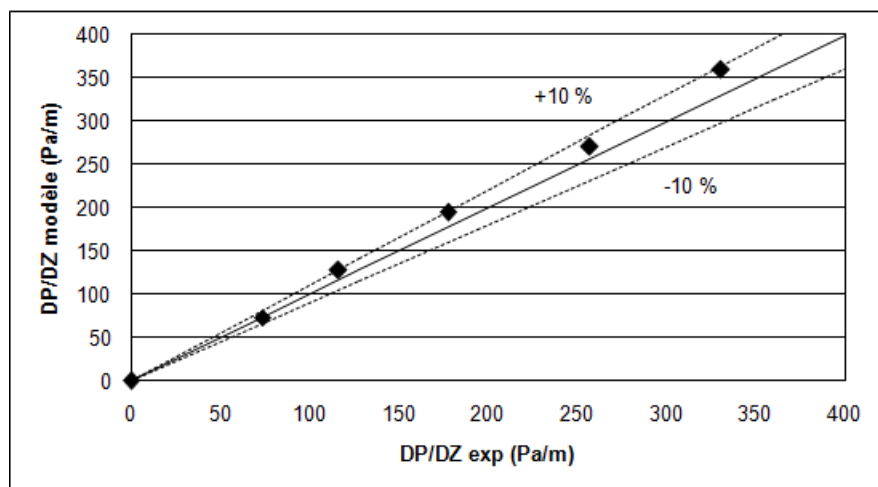


Figure 5.6: Prédiction de la perte de charge par le modèle de Behrens : lit hybride (Katapak-SP12 + Mellapak Plus 752Y)

5.2 Rétention Statique de liquide

Dans cette section, nous allons utiliser des corrélations trouvées dans la littérature pour déterminer la rétention statique (Behrens (2006)[3]). La Figure 5.7 représente la rétention statique dans les paniers d'un élément de Katapak-SP11 rapportée à l'aire des paniers. On peut considérer les paniers catalytiques des Katapak comme un lit de billes, ce qui permet d'utiliser des corrélations ci-dessous. Pour rappel, dans le cas des paniers contenant des billes de verre non poreuses, la rétention statique de liquide est composée de deux contributions : la rétention capillaire, $h_{L,cap}$ et la rétention résiduelle, $h_{L,rés}$.

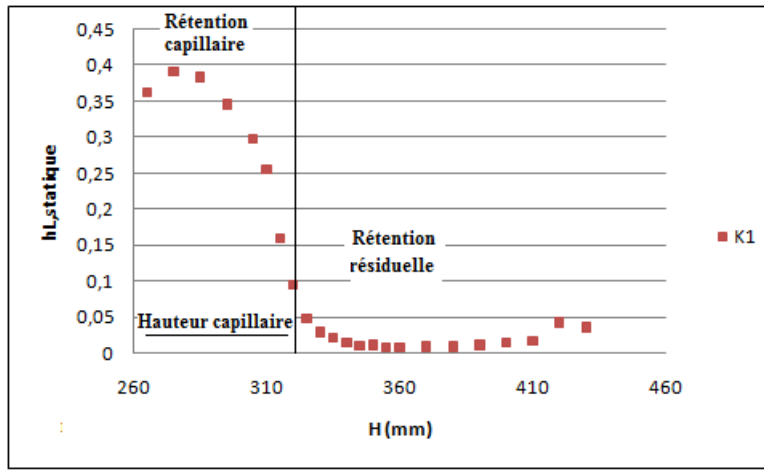


FIGURE 5.7: Rétention statique dans les paniers d'un élément de Katapak-SP11

La rétention capillaire résulte d'un bilan de force entre la force de gravité et les forces de capillarité. La hauteur capillaire est donnée par la relation suivante :

$$h_{cap} = \frac{6(1 - \varepsilon_R)\sigma}{d_p \varepsilon_R \rho_L g} \cos \theta \quad (5.21)$$

Où

- σ : tension de surface du liquide (N/m) ;
- ε_R : fraction de vide des paniers (-) ;
- ρ_L : masse volumique du liquide (kg/m³) ;
- d_p : diamètre des billes de verre (m) ;
- g : accélération de la pesanteur (m/s²) ;
- θ : angle de contact liquide-solide (°) ;

On obtient une hauteur capillaire de 4,5 cm, qui est en accord avec celle déterminée à partir de la tomographie (+ - 5 cm).

La rétention capillaire est déterminée par la relation suivante

$$h_{L,cap} = h_{cap} \frac{\varepsilon_R t_R l_R}{V_R} \quad (5.22)$$

Où

- t_R : épaisseur des paniers (m) ;
- l_R : longueur des paniers (m) ;
- V_R : volume des paniers (m) ;

La rétention résiduelle de liquide a été définie comme le liquide retenu par les forces de capillarité aux points de contact entre les billes. Cette rétention est souvent déterminée à partir de la relation de Saez et Carbonell[28] utilisant le nombre d'Eötvös, nombre adimensionnel représentant le rapport entre la gravité et la tension de surface. Cette relation a été adaptée pour tenir compte de l'entièreté des paniers :

$$h_{L,res} = 0.028 \frac{1 - \varepsilon_R}{\varepsilon_R} \left(\frac{h_{cb} - h_{cap}}{h_{cb}} \right) \quad (5.23)$$

Où

- h_{cb} : hauteur du panier (m) ;
- h_{cap} : hauteur capillaire (m) ;

La rétention statique dans les paniers est donc donnée par la relation suivante :

$$h_{L,stat} = h_{L,cap} + h_{L,res} = h_{cap} \frac{\varepsilon_R t_R l_R}{V_R} + 0.028 \frac{1 - \varepsilon_R}{\varepsilon_R} \left(\frac{h_{cb} - h_{cap}}{h_{cb}} \right) \quad (5.24)$$

Cette rétention peut être rapportée à la section totale de la colonne en la multipliant par le pourcentage de surface occupée par les paniers dans le lit d'empilage. Le tableau 5.1 reprend les valeurs de la rétention statique de liquide dans les paniers rapportée à la section totale de la colonne déterminées à partir de la tomographie et des corrélations précédentes pour le Katapak-SP11 et le Katapak-SP12. La valeur déterminée par le modèle se trouve dans la gamme des valeurs obtenues par tomographie dans le cas du Katapak-SP11. Tandis que dans le cas du Katapak-SP12, les valeurs de rétention statique dans les paniers sont plus faibles que celle déterminée par le modèle.

	K1	K2	K3	K4	modèle
K-SP11	4.89	2.93	4.09	5.71	5.78 %
K-SP12	3.58	1.12	1.93	1.88	4.46 %

Tableau 5.1: Rétention statique dans les paniers du Katapak-SP11 rapportée à la section totale de la colonne.

5.3 Rétention globale de liquide

Dans la littérature, on trouve divers modèles pour déterminer la rétention de liquide dans un lit d'empilages structurés et modulaires:

- Spiegel et al.[31] (1987) : Modèle pour la détermination de la rétention globale de liquide dans un lit de Mellapak.
- Hoffmann et al.[14] (2004): Modèle pour la détermination de la rétention globale de liquide dans un lit de Multipak de 0.05 m et de 0.1 m de diamètre. Cet empilage modulaire est composé d'une zone de séparation et d'une zone de réaction.
- Ratheesh et Kannan[24] (2004): Ces auteurs ont adapté le modèle de Hoffmann et al. au Katapak-SP12 de 0.1 m de diamètre.
- Kolodziej et al.[16] (2005): Modèle pour la détermination de la rétention dynamique dans un lit de Katapak-S de 0.25 m de diamètre.
- Behrens[3] (2006): Modèle Delft (Sulzer) pour la détermination de la rétention de liquide dans un lit de Mellapak Plus 752Y, dans un lit de Katapak-SP11 et de Katapak-SP12 de 0.45 m de diamètre.

Nous allons utiliser uniquement le modèle de Spiegel, le modèle de Ratheesh et Kannan et le modèle de Behrens, car ils concernent les mêmes empilages que ceux étudiés dans ce travail.

5.3.1 Modèle de Spiegel

Ce modèle ne concerne que les empilages structurés tels que le Mellapak Plus 752Y. Il propose la relations suivante pour déterminer la rétention de liquide :

$$h_L = \frac{0.0169 * a_{sp}^{0.83} * (3600 * u_L)^{0.37}}{100} \quad (5.25)$$

La Figure 5.8 compare les valeurs de rétention déterminées par le modèle aux valeurs obtenues par tomographie. Les résultats sont en accord avec un écart inférieur à 15%.

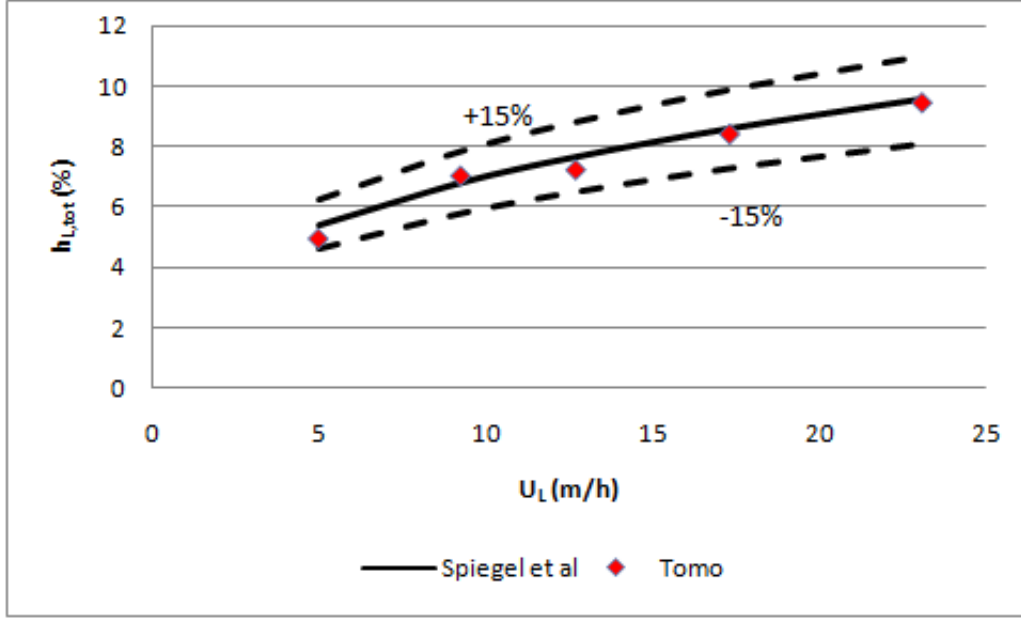


FIGURE 5.8: Comparaison des valeurs de rétention de liquide dans un lit de Mellapak Plus 752Y obtenues par la tomographie avec celles déterminées par le modèle proposé par Spiegel.

5.3.2 Modèle de Ratheesh et Kannan

5.3.2.1 Mellapak Plus 752Y

Pour rappel, cet empilage n'est constitué que de feuilles ondulées perforées (surface des trous $\equiv 10\%$) et ne possède donc pas de zone de réaction. La rétention de liquide peut être déterminée à partir de la relation suivante proposée par Mackowiak[19](1991):

$$h_L = A.F_{r,L}^B \quad (5.26)$$

où le nombre de Froude est donnée par:

$$F_{r,L} = \frac{u_L^2 \cdot a}{g \cdot \sin(\theta)} \quad (5.27)$$

avec:

- A et B : paramètres à ajuster;
- u_L : représente la vitesse superficielle du liquide (m/s);

- a : représente la surface spécifique de l'empilage (m^2/m^3);
- g : l'accélération de la pesanteur;
- θ : l'angle de contact du liquide sur la surface de l'empilage (50°)

La Figure 5.9 compare les valeurs de rétention de liquide dans un lit de Mellapak Plus 752Y obtenues à partir de la tomographie avec ceux déterminées par le modèle ci-dessus. Les paramètres A et B valent respectivement 36.76 et 0.228. On constate que le modèle est en accord avec les données obtenues par la tomographie à rayons X. L'écart entre le modèle et la tomographie est inférieure à 15%.

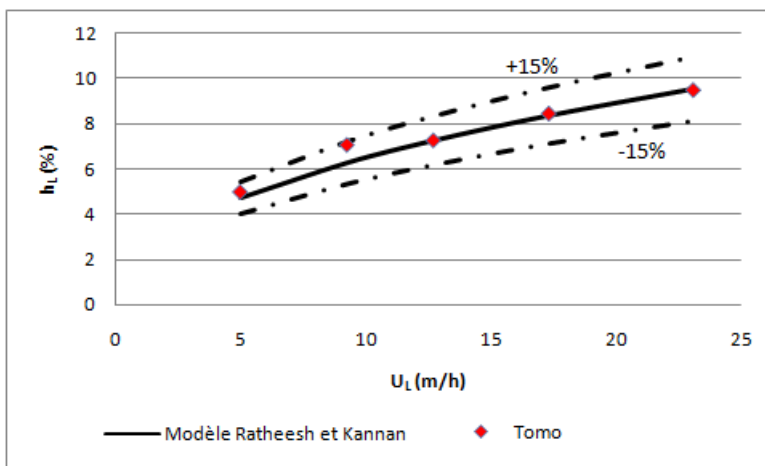


Figure 5.9: Comparaison des valeurs de rétention de liquide dans un lit de Mellapak Plus 752Y obtenues par la tomographie avec celles déterminées par le modèle proposé par Ratheesh et Kannan.

5.3.2.2 Katapak-SP11 et Katapak-SP12

Pour rappel, le Katapak -SP est constitué d'une zone de distillation (feuille de Mellapak Plus 752Y) et d'une zone de réaction (paniers catalytiques). Le modèle tient compte de ces deux zones.

a) Zone de distillation

Vu que la zone distillation est composée de feuilles de Mellapak Plus, nous allons donc utiliser la même relation que celle utilisée pour la détermination de la rétention de liquide dans un lit de Mellapak Plus 752Y. Cependant, il faudra utiliser la vitesse superficielle du liquide qui s'écoule dans la zone de distillation. Nous savons que la vitesse superficielle totale se calcule à partir de la relation suivante:

$$u_{L,tot} = \frac{Débit_{tot}}{Sect_{tot}} \quad (5.28)$$

La vitesse superficielle du liquide dans les différentes zones se détermine par:

$$u_{L,dist} = \frac{Débit_{dist}}{Sect_{dist}} = \frac{\varphi * Débit_{tot}}{\Gamma * Sect_{tot}} = \frac{\varphi}{\Gamma} u_{L,tot}$$

et

$$u_{L,react} = \frac{Débit_{react}}{Sect_{react}} = \frac{\alpha * Débit_{tot}}{\Lambda * Sect_{tot}} = \frac{\alpha}{\Lambda} u_{L,tot}$$

Où

- φ : Fraction de liquide qui s'écoule dans la zone de distillation (-);
- Γ : Rapport entre la section droite occupée par la zone de distillation et la section droite totale de la colonne (-);
- α : Fraction de liquide qui s'écoule dans la zone de réaction (-);
- Λ : Rapport entre le volume occupé par les paniers et le volume totale de l'empilage (-).

La rétention de liquide dans la zone de distillation s'obtient par:

$$h_L = 36.76 * F_{r,L}^{0.228} \quad (5.29)$$

en utilisant la vitesse superficielle du liquide, $u_{L,dist}$ et les paramètres (36.76 et 0.228) qui ont été déterminés sur base des mesures sur le Mellapak Plus 752Y.

b) Zone de réaction

L'évaluation de la rétention de liquide dans les paniers dépend de la valeur du point de charge catalytique, c'est-à-dire de la vitesse superficielle du liquide correspondant au remplissage complet des paniers ($u_{L,P}$).

Si $u_{L,react} < u_{L,P}$, la rétention dans les paniers se calcule à partir de la relation suivante:

$$h_{L,react} = \Lambda * \varepsilon_{paniers} * \left(\frac{u_{L,react}}{u_{L,P}} \right)^{0.587} \quad (5.30)$$

Si $u_{L,react} \geq u_{L,P}$, la rétention dans les paniers correspond à la porosité des paniers rapporté à la section totale de la colonne:

$$h_{L,react} = \Lambda * \varepsilon_{paniers} \quad (5.31)$$

c) Globale

Toutes ces relations permettent d'évaluer la rétention totale de liquide au sein des éléments de Katapak-SP11 et Katapak-SP12. Il suffit simplement de sommer les différentes contributions :

Si $u_{L,réact} < u_{L,P}$,

$$h_{L,tot} = h_{L,dist} + h_{L,réact} = 36.76 * F_{r,L}^{0.228} + \Lambda * \varepsilon_{paniers} * \left(\frac{u_{L,react}}{u_{L,P}} \right)^m \quad (5.32)$$

Tandis que si $u_{L,réact} \geq u_{L,P}$, on obtient:

$$h_{L,tot} = h_{L,dist} + h_{L,réact} = 36.76 * F_{r,L}^{0.228} + \Lambda * \varepsilon_{paniers} \quad (5.33)$$

Les Figure 5.10 et 5.11 comparent les valeurs de rétention de liquide obtenues par ce modèle avec celles calculées à partir de la tomographie respectivement dans un lit de Katapak-SP11 et dans un lit de Katapak-SP12. On constate que les valeurs sont en bon accord, avec un écart inférieur à 15%.

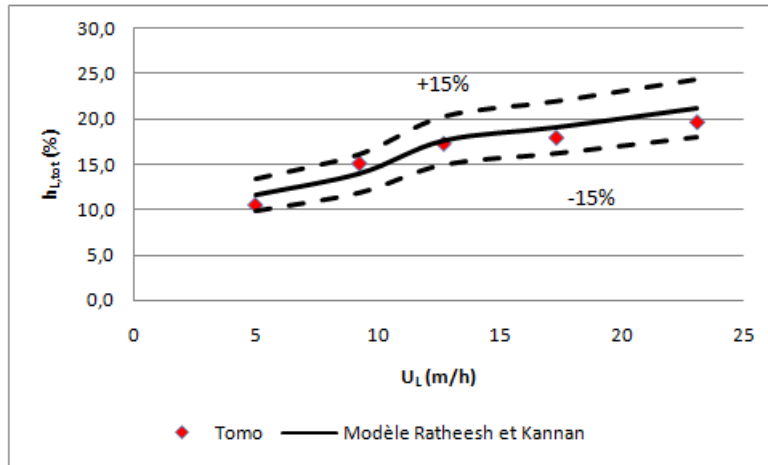


Figure 5.10: Comparaison des valeurs de rétention de liquide dans un lit de Katapak-SP11 obtenues à partir de la tomographie avec celles évaluées à partir du modèle de Ratheesh et Kannan

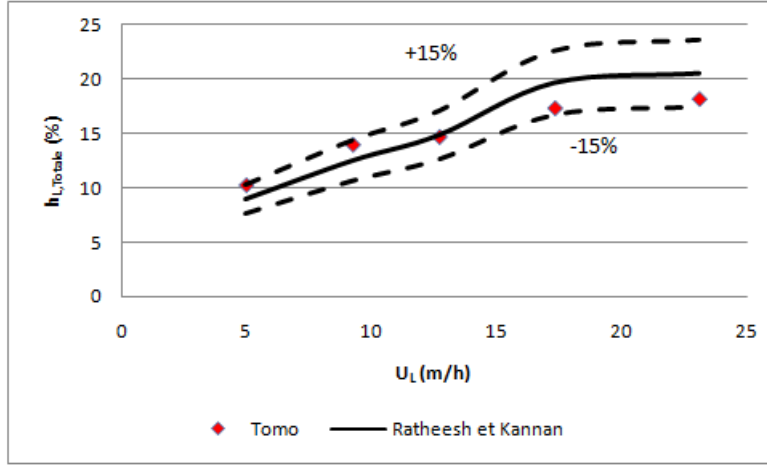


Figure 5.11: Comparaison des valeurs de rétention de liquide dans un lit de Katapak-SP12 obtenues à partir de la tomographie avec celles évaluées à partir du modèle de Ratheesh et Kannan

Dans le cas d'un écoulement à contre-courant gaz-liquide, l'influence du gaz sur la rétention de liquide se fait à partir d'un certain débit de gaz ($u_{G,LP}$), qui peut être évalué par une corrélation proposée par Ratheesh et Kannan:

$$u_{G,LP} = 0.276 * u_L^{-0.285} \quad (5.34)$$

En présence d'un écoulement de gaz, la rétention de liquide se détermine en fonction de la perte de charge suivant la relation ci-dessous:

$$h_L = h_{LP} + c \left(\frac{\frac{\Delta P}{\Delta Z}}{\rho_L g} \right)^d \quad (5.35)$$

Où c et d représentent des paramètres à ajuster. Nous avons conservé les valeurs déterminées par ces auteurs: $c = 1.108$ et $d = 1.89$.

La Figure 5.12 montre les valeurs de rétention de liquide évaluées à partir de la relation ci-dessus pour les débits de liquide élevés et pour différents débits de gaz. On constate que les valeurs sont en accord avec un écart inférieur à 15%.

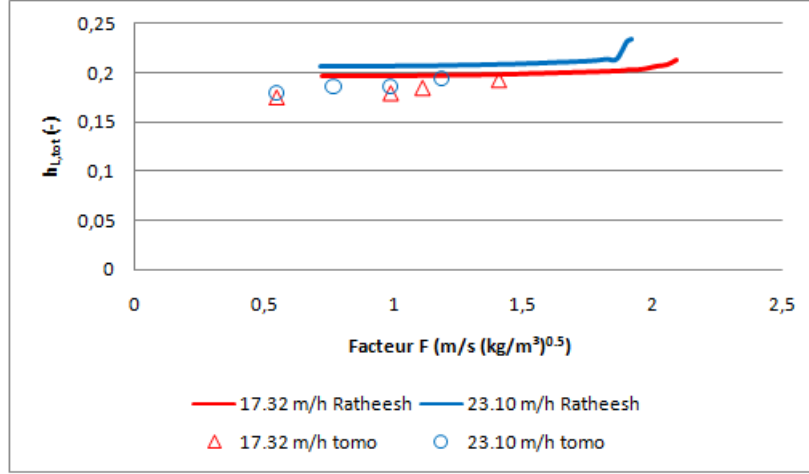


Figure 5.12: Rétention de liquide en fonction du Facteur F pour un lit de Katapak-SP12 : modèle de Ratheesh et Kannan

5.3.3 Modèle de Delft

Ce modèle est proposé par Behrens[3] (2006). Le modèle de Delft a été développé en tenant compte des caractéristiques géométriques des empilages structurés et modulaires, car ces dernières influencent l'écoulement des fluides au sein du lit d'empilage. Il considère également que l'écoulement de liquide est uniforme sur toute la hauteur de la colonne. Nous allons tester ce modèle sur les différents empilages étudiés dans ce travail.

5.3.3.1 Mellapak Plus 752Y

Ce modèle considère qu'un film de liquide d'épaisseur uniforme s'écoule sur les feuilles de Mellapak sur toute la hauteur du lit. Il utilise la relation suivante pour évaluer la rétention de liquide dans un lit de Mellapak Plus 752Y:

$$h_{L,tot} = \delta_L * a_{sp} \quad (5.36)$$

où:

- δ_L : épaisseur du film de liquide (m);
- a_{sp} : surface spécifique de l'empilage (m²/m³)

L'épaisseur du film se calcule de la manière suivante: On a

$$\delta_L = \sqrt[3]{\frac{3 * \mu_L * u_L}{a_{sp} * \rho_L * g * \sin(a_L)}} \quad (5.37)$$

où:

- μ_L : viscosité dynamique du liquide (Pa.s);
- u_L : vitesse superficielle du liquide (m/s);
- ρ_L : masse volumique du liquide (kg/m³);
- g : accélération de la pesanteur;
- a_L : angle effectif d'écoulement du liquide (radian).

Cet angle de contact se détermine à partir de l'angle des ondulations des feuilles de Mellapak (a_c):

$$a_L = atan \left(\frac{\cos(90 - a_c)}{\sin(90 - a_c) * \cos(atan(\frac{b}{2h}))} \right) \quad (5.38)$$

avec :

- a_c : angle des ondulations des feuilles (41°);
- b : base des ondulations (m);
- h : hauteur des ondulations (m).

La Figure 5.13 compare les valeurs de rétention déterminées par ce modèle avec les valeurs obtenues à partir de la tomographie. Les valeurs obtenues par le modèle sont en bon accord avec celles de la tomographie avec un écart inférieur à 15%.

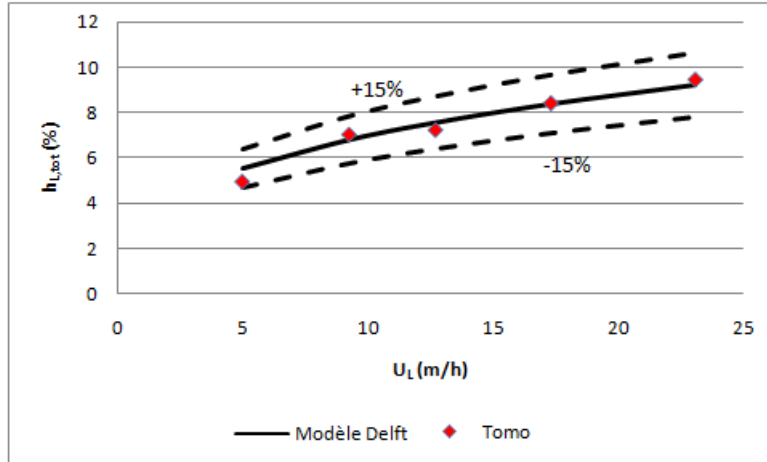


Figure 5.13: Comparaison des valeurs de rétention de liquide dans un lit de Mellapak Plus 752Y obtenues à partir de la tomographie avec celles évaluées à partir du modèle de Delft

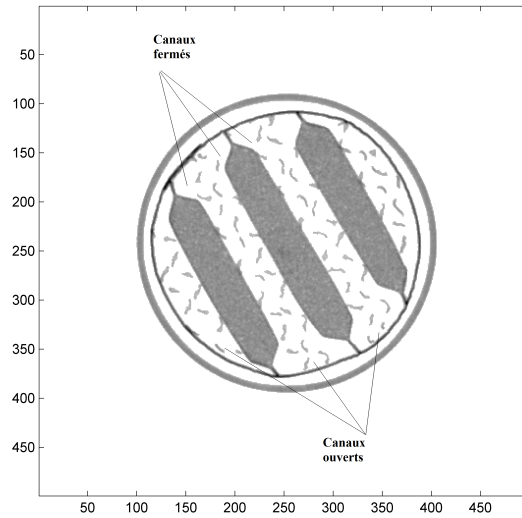


Figure 5.14: Canaux ouverts et canaux fermés dans un empilage de Katapak-SP12

5.3.3.2 Katapak-SP11 et Katapak-SP12

Ce modèle tient également compte des différentes zones. De plus, dans la zone de distillation, il fait une distinction entre les canaux ouverts et les canaux fermés (Figure 5.14).

a) Zone de distillation

Cette zone étant composée de feuilles de Mellapak, nous allons utiliser la même relation que dans le cas de la détermination de la rétention de liquide du Mellapak Plus 752Y:

- dans les canaux ouverts:

$$h_{L,OC} = \delta_L * a_{OC} \quad (5.39)$$

- dans les canaux fermés:

$$h_{L,CC} = \delta_L * a_{CC} \quad (5.40)$$

avec:

- a_{OC} : surface spécifique des canaux ouverts (m^2/m^3) déterminée par:

$$a_{OC} = \frac{a_{sp}}{\Gamma X} \quad (5.41)$$

– a_{CC} : surface spécifique des canaux ouverts (m^2/m^3) déterminée par:

$$a_{CC} = \frac{a_{sp}}{\Gamma(1 - X)} \quad (5.42)$$

– Γ : Rapport entre la section droite occupée par la zone de distillation et la section droite totale de la colonne (-);

– X : rapport entre le nombre de canaux ouverts et le nombre total de canaux (-).

La rétention de liquide dans la zone de distillation s'obtient ainsi par:

$$h_{L,dist} = (X * h_{L,OC} + (1 - X) * h_{L,CC}) * (1 - \Lambda) \quad (5.43)$$

b) Zone de réaction

Le modèle de Delft tient également compte du point de charge catalytique dans l'évaluation de la rétention de liquide dans les paniers.

Si $u_{L,réact} < u_{L,P}$,

$$h_{L,réact} = h_{L,dist} + h_{L,stat} \quad (5.44)$$

Pour $u_{L,réact} \geq u_{L,P}$, les paniers sont considérés comme totalement remplis de liquide et la rétention de liquide représente la valeur de la porosité rapportée à la section totale de la colonne:

$$h_{L,réact} = \Lambda * \varepsilon_{paniers} \quad (5.45)$$

c) Globale

La rétention totale de liquide au sein de ces empilages modulaires s'obtient en sommant les contributions des différentes zones:

Si $u_{L,réact} < u_{L,P}$,

$$h_{L,tot} = h_{L,réact} + h_{L,dist} = 2 * (X * h_{L,OC} + (1 - X) * h_{L,CC}) * (1 - \Lambda) + h_{L,stat} \quad (5.46)$$

Tandis que pour $u_{L,réact} \geq u_{L,P}$, on obtient:

$$h_{L,tot} = h_{L,réact} + h_{L,dist} = 2 * (X * h_{L,OC} + (1 - X) * h_{L,CC}) * (1 - \Lambda) + \Lambda * \varepsilon_{paniers} \quad (5.47)$$

Les Figures 5.15 et 5.16 comparent les valeurs de rétention de liquide obtenues par ce modèle avec celles calculées à partir de la tomographie respectivement dans un lit de Katapak-SP11 et dans un lit de Katapak-SP12. On constate que les valeurs sont en bon accord avec un écart inférieur à 15% pour le lit de Katapak-SP12 et un écart inférieur à 25% pour le lit de Katapak-SP11.

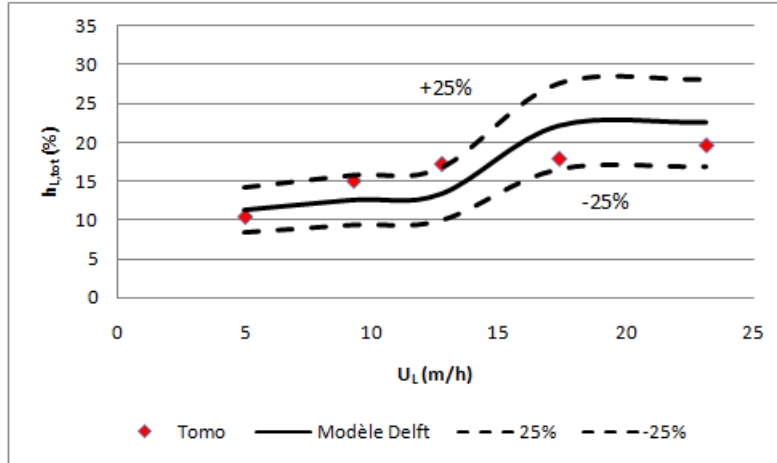


Figure 5.15: Comparaison des valeurs de rétention de liquide dans un lit de Katapak-SP11 obtenues à partir de la tomographie avec celles évaluées à partir du modèle de Delft

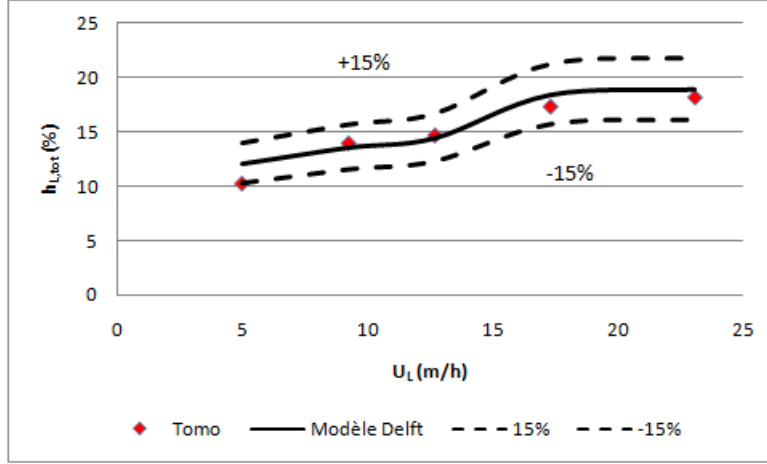


Figure 5.16: Comparaison des valeurs de rétention de liquide dans un lit de Katapak-SP12 obtenues à partir de la tomographie avec celles évaluées à partir du modèle de Delft

Dans le cas d'un écoulement à contre-courant gaz-liquide, la rétention de liquide est fournie par la relation suivante qui tient compte de la perte de charge dans le lit d'empilage:

$$h_L = h_{L,réact} + 0.2 * \left[1 + 150 \left(\frac{\frac{\Delta P}{\Delta Z}}{\rho_L g} \right)^2 \right] * F_{r,L}^{0.25} \quad (5.48)$$

La Figure 5.17 représente la rétention de liquide en fonction du facteur F pour des débits de liquide au dessus du point de charge catalytique. On observe que le modèle est en accord avec les valeurs obtenues à partir de la tomographie. Le modèle présente une différence de pente qui correspond au phénomène d'engorgement qui entraîne une augmentation brusque de la rétention de liquide. On n'a pas pu prendre des mesures tomographiques pour des vitesses de gaz trop élevées, car le phénomène d'engorgement fait vibrer la colonne et rend les images illisibles.

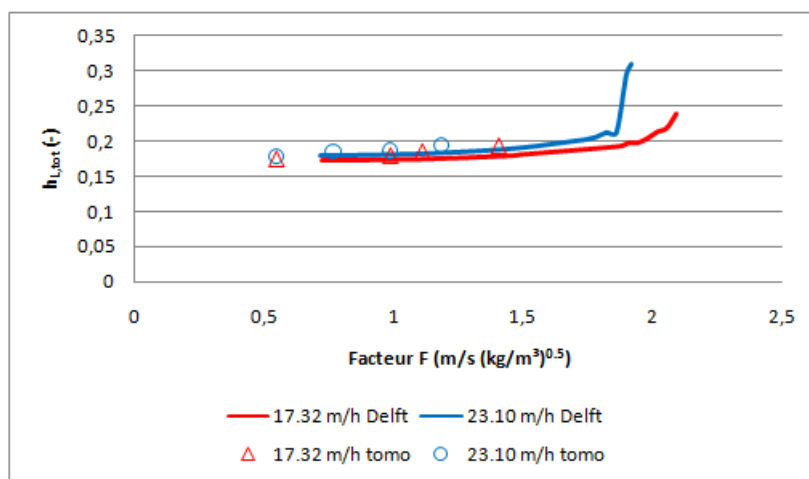


Figure 5.17: Rétention de liquide dans un lit de Katapak-SP12 pour un écoulement à contre courant gaz-liquide: modèle Delft vs Tomographie

5.4 Aire interfaciale gaz-liquide

Pour rappel, la mesure de l'aire interfaciale est très importante car elle intervient dans les relations exprimant les transferts de matière entre les phases mises en jeu. En effet, elle détermine la qualité du contact entre les deux phases (liquide et gaz) et donc la qualité du transfert de matière.

5.4.1 Mellapak Plus 752Y

Dans la littérature, il existe divers modèles pour évaluer l'aire interfaciale gaz-liquide pour des empilages aléatoires (Onda et al[23] (1993), Billet et al[4] (1985), Rocha et al[25] (1996),...). On commence à voir apparaître de plus en plus de modèles adaptés aux empilages structurés et modulaires (Olujić et al[21] (1999), Brunazzi et al[8] (1995), Behrens[3] (2006), Tsai et al[36, 37], ...).

Nous avons comparé nos mesures aux prédictions de quatre modèles.

5.4.1.1 Modèle de Brunazzi et al[8], (1995)

Ce modèle a été testé sur le Mellapak 250Y et le Mellapak Plus 752Y (J. Sieres et al[30], 2009). L'évaluation de l'aire interfaciale gaz-liquide (a_{GL}) se base sur l'équation suivante :

$$\frac{a_{GL}}{a_p} = \frac{d_{eq}}{4} * \left(\frac{h_L}{\varepsilon_p} \right)^{1.5} * \left(\frac{\rho_L * g * \varepsilon_p * \sin^2(\theta)}{3 * \mu_L * u_L} \right)^{0.5} \quad (5.49)$$

avec:

- a_p : surface spécifique de l'empilage (m^2/m^3);
- d_{eq} : diamètre équivalent (m);
- h_L : rétention de liquide (-);
- ε_p : porosité de l'empilage (-);
- μ_L : viscosité dynamique du liquide (Pa.s);
- u_L : vitesse superficielle du liquide (m/s);
- ρ_L : masse volumique du liquide (kg/m^3);
- g : accélération de la pesanteur;
- θ : angle des ondulations des feuilles de Mellapak (radian).

5.4.1.2 Modèle de Olujić et al[21], (1999)

Il s'agit d'un modèle empirique basé sur des résultats expérimentaux obtenus sur des empilages structurés. Ce modèle relie l'aire interfaciale gaz-liquide à la vitesse superficielle du liquide suivant la relation :

$$\frac{a_{GL}}{a_p} = \frac{(1 - \Omega)}{\left(1 + \frac{A}{u_{L,s}^B}\right)} \quad (5.50)$$

où A et B sont des paramètres à ajuster selon le type d'empilage. Pour le Mellapak Plus 752Y, A et B ajustés pour nos résultats valent respectivement 0.0003 et 1.13.

5.4.1.3 Modèle de Behrens[3], (2006)

Ce modèle se base sur la relation de Onda[23] adaptée à la géométrie des empilages structurés (Mellapak) et modulaires (Katapak-SP). On obtient l'équation suivante:

$$\frac{a_{GL}}{a_p} = (1 - \Omega) * \left\{ 1 - \exp \left(-1.45 * \left(\frac{0.075}{\sigma_L} \right)^{0.75} * Re_L^{0.1} * Fr_L^{-0.05} * We_L^{0.2} \right) \right\} \quad (5.51)$$

avec:

– Re_L : nombre de Reynolds en phase liquide (-):

$$Re_L = \frac{\rho_L * u_L}{a_p * \mu_L} \quad (5.52)$$

– Fr_L : nombre de Froude en phase liquide (-):

$$Fr_L = \frac{a_p * u_L^2}{g * \sin(a_L)} \quad (5.53)$$

– We_L : nombre de Weber en phase liquide (-):

$$We_L = \frac{\rho_L * u_L^2}{a_p * \sigma_L} \quad (5.54)$$

– Ω : pourcentage de trous dans l'empilage (-);

5.4.1.4 Modèle de Tsai et al[37], (2009)

Tsai et al ont testé leur modèle sur trois empilages structurés: Mellapak 250Y , Mellapak 500Y et Flexipac 1Y . Les valeurs d'aire interfaciale gaz-liquide obtenus par le modèle sont en accord avec leurs résultats expérimentaux avec un écart inférieur à 15%. Ce modèle relie l'aire interfaciale aux nombres adimensionnels de Froude et de Weber:

$$\frac{a_{GL}}{a_p} = 1.362 * \left[(Fr_L)^{-1/3} * We_L \right]^{0.122} \quad (5.55)$$

5.4.1.5 Comparaison des résultats

La Figure 5.18 compare les valeurs du rapport entre l'aire interfaciale gaz-liquide et la surface spécifique pour le Mellapak Plus 752 Y obtenues à partir des différents modèles aux valeurs obtenues par tomographie. On observe que les modèles de Olujic et al, de Brunazzi et al et de Tsai sont en très bon accord avec les valeurs obtenues à partir des images tomographiques, avec un écart inférieur à 15%. Tandis que le modèle de Behrens fournit des valeurs trop faibles.

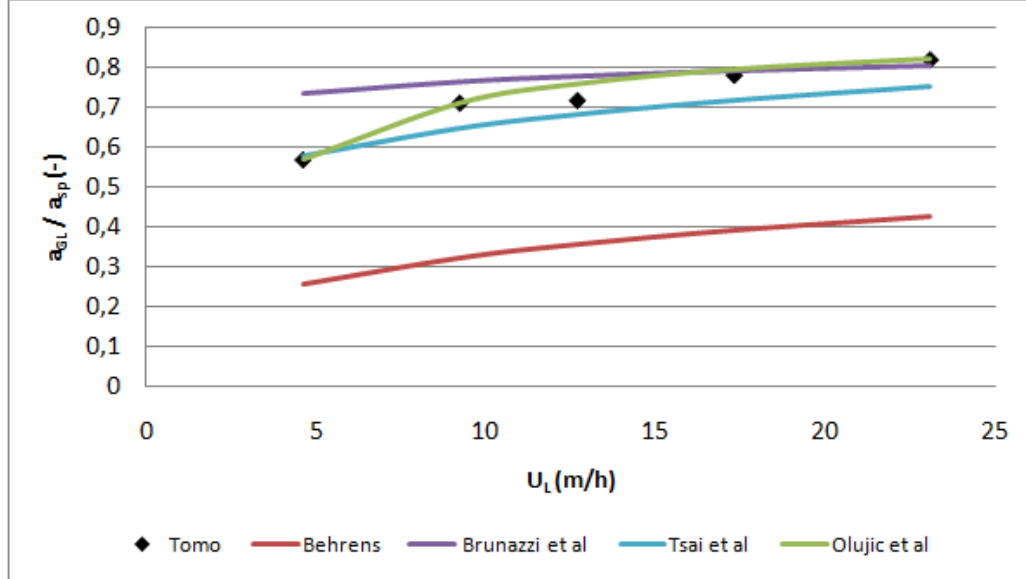


Figure 5.18: Rapport entre l'aire interfaciale gaz-liquide et la surface spécifique du Mellapak Plus 752Y en fonction de la vitesse superficielle du liquide

5.4.2 Katapak SP11 et Katapak SP12

Pour les empilages modulaires, le seul modèle publié pour la détermination de l'aire interfaciale gaz-liquide est celui de Behrens, qui propose d'utiliser l'équation 5.51 dans les canaux ouverts et fermés des empilages modulaires. La Figure 5.19 représente les valeurs d'aire interfaciale gaz-liquide pour le Katapak-SP11 et le Katapak-SP12. On observe que les valeurs déterminées à partir du modèle sont deux fois plus faibles que celles obtenues par la tomographie.

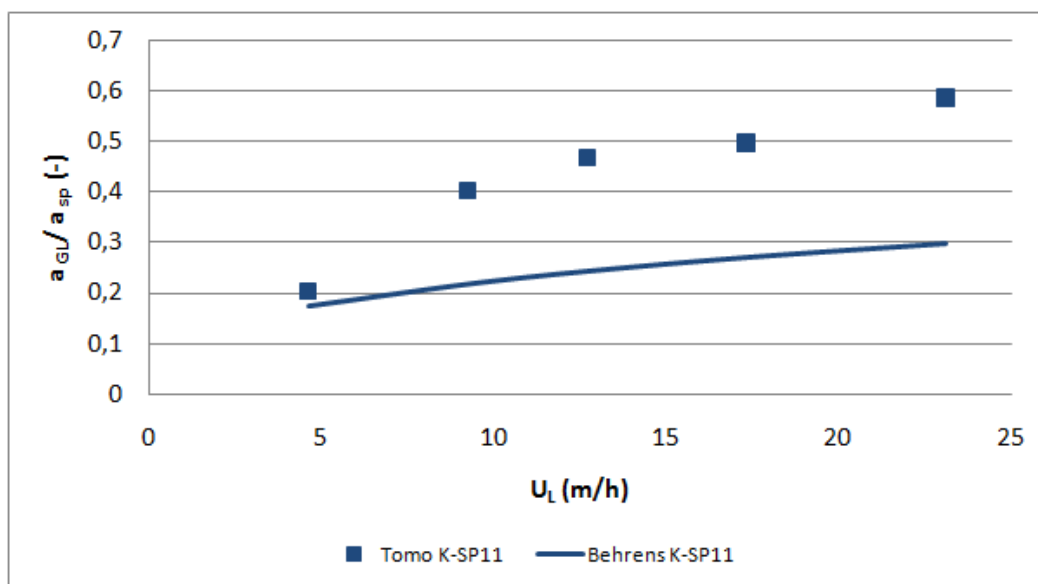


FIGURE 5.19: Rapport entre l'aire interfaciale gaz-liquide et la surface spécifique du Katapak SP11 en fonction de la vitesse superficielle du liquide

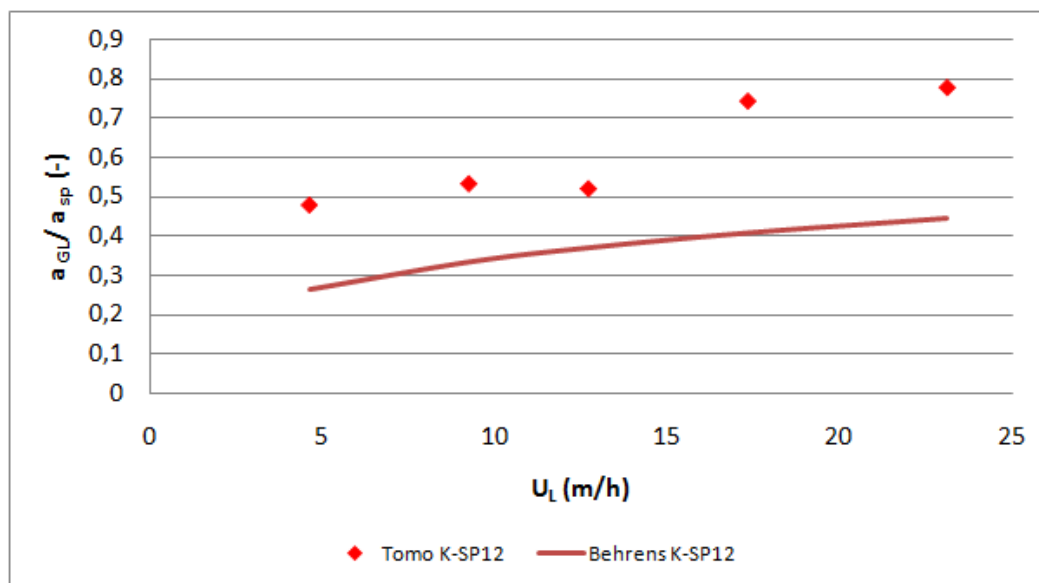


FIGURE 5.20: Rapport entre l'aire interfaciale gaz-liquide et la surface spécifique du Katapak SP12 en fonction de la vitesse superficielle du liquide

Conclusion

Les différents résultats obtenus au cours de ce travail montrent que la tomographie à rayons X est une technique de mesure particulièrement bien adaptée à l'étude de l'hydrodynamique dans des colonnes à empilages structurés et modulaires, car elle permet d'accéder aux distributions spatiales des différentes phases en présence, tout en n'introduisant aucune perturbation au niveau de l'écoulement des fluides.

L'analyse des images de sections droites de la colonne non irriguée a permis de montrer que la résolution du tomograhe est suffisante pour permettre de discerner les plus petits détails tels que les trous dans les feuilles ondulées,... Ces images ont également permis de déterminer la fraction de vide et la surface spécifique de chaque type d'empilage étudié dans ce travail (Mellapak Plus 752Y, Katapak-SP12 et Katapak-SP11). Ces valeurs sont en très bon accord avec celles annoncées par le fabricant, ainsi qu'avec les valeurs estimées sur base des caractéristiques géométriques des empilages.

La perte de charge a été mesurée pour différents débits de liquide et de gaz. Ces valeurs sont en très bon accord avec des valeurs expérimentales de la littérature (Ratheesh et Kannan[24], 2004 et Behrens[3], 2006) ainsi qu'avec des valeurs calculées par des corrélations de la littérature. Les valeurs de perte de charge sont nécessaires car elles interviennent dans certaines corrélations pour déterminer la rétention de liquide dans un lit parcouru par un écoulement à contre-courant gaz-liquide.

Des images de sections droites de la colonne irriguée ont ensuite été réalisées. L'analyse qualitative de ces images a permis d'observer la distribution spatiale des fluides au sein du lit d'empilage. On a observé que la majorité du liquide se situe dans les paniers et que les paniers externes se remplissent plus rapidement que les paniers internes. D'un point de vue plus quantitatif, les valeurs statiques et globales de la rétention de liquide ont été calculées sur l'ensemble de la colonne, pour différents débits de liquide et de gaz. La rétention statique dans les empilages modulaires est plus élevée en bas des éléments. Cette rétention correspond à la rétention capillaire qui s'étend sur une hauteur de 5 cm (dite hauteur capillaire). Au dessus de cette hauteur capillaire, se situe la rétention résiduelle de liquide. En ce qui concerne la rétention globale de liquide, elle augmente logiquement

avec le débit de liquide et de gaz. On a observé que l'engorgement apparaît plus vite pour le Katapak-SP11 que le Katapak-SP12. L'influence de la viscosité du liquide sur les valeurs de rétention a également été étudiée et les mesures ont montré que la rétention de liquide augmente avec la viscosité du liquide. Les comparaisons effectuées ont montré que ces valeurs « tomographiques » étaient en très bon accord avec d'autres valeurs expérimentales obtenues par la méthode volumétrique (Behrens[3], 2006) et par méthode de pesée (Viva[40],2009) ainsi d'ailleurs qu'avec des valeurs calculées grâce à un certain nombre de corrélations disponibles dans la littérature. Un accord satisfaisant a été obtenu par rapport aux corrélations de Spiegel et al[31](1987), Ratheesh et Kannan[24] (2004), ainsi que de Behrens[3] (2006).

Pour les empilages modulaires (Katapak-SP11 et Katapak-SP12) constitués de paniers catalytiques et de zone de distillation, le point de charge catalytique a été déterminé sur base des images de sections droites d'empilage irrigué. Le point de charge catalytique correspond au débit de liquide minimum pour lequel les paniers catalytique sont complètement remplis de liquide. Les mesures réalisées ont montré que le point de charge n'apparaissait pas simultanément dans toute la colonne et dépend de la position verticale dans l'élément et dans la colonne et aussi de la position du panier (interne ou externe). En effet, nous avons observé que le point de charge apparaît plus vite dans l'élément situé en bas dans la colonne et dans les paniers externes.

L'aire interfaciale gaz-liquide a été évaluée sur les images binarisées de sections droites d'empilage irrigué. Pour le Mellapak Plus 752Y, les valeurs d'aire interfaciale gaz-liquide sont en accord avec les valeurs calculées à partir de corrélations proposées par Olujic et al[21](1999), Brunazzi et al[8](1995) et ainsi que celle proposée par Tsai et al[37](2009). La corrélation proposée par Behrens[3] pour les empilages modulaires est la seule disponible dans la littérature et fournit des valeurs d'aire interfaciale gaz-liquide plus faibles que celles déterminées par la tomographie.

Le travail a permis d'un peu mieux comprendre l'écoulement dans des empilages très complexes comme les empilages de Katapak, mais de nombreuses questions persistent. Il serait utile de réaliser des mesures tomographiques sur des colonnes de plus grand diamètre, ce qui permettrait de se rapprocher des conditions de fonctionnement des colonnes industrielles. Il serait aussi intéressant de développer un modèle pour déterminer l'aire interfaciale gaz-liquide des empilages modulaires sur base des données tomographiques. Il serait également intéressant d'observer ce que deviendraient les distributions des différentes phases si le gaz et le liquide étaient injectés en co-courant au sommet de la colonne. Cela permettrait d'étudier les caractéristiques des différents régimes hydrodynamiques, ainsi que de mieux comprendre les transitions intervenant entre ces différents régimes.

Bibliographie

- [1] M. S. Beck and R. A. Williams. Tomography : an european innovation and its applications. *Meas. Sci. Technol.*, 7 :215–225, 1996.
- [2] M. Behrens, Z. Olujic, and P.J. Jansen. Combining reaction with distillation. hydrodynamic and mass transfer performances of modular catalytic structured packings. *Chemical Engineering Research and Design*, 84 :381–389, 2006.
- [3] Marcel Behrens. *Hydrodynamics and Mass Transfer of Modular Catalytic Structured Packing*. PhD thesis, Technische Universiteit Delft, 2006.
- [4] R. Billet. Proceedings of the first glitsch packed column workshop. In GlitschInc., editor, *Packed Columns Analysis and Design*, Dallas, USA, 1985.
- [5] R. Billet and M. Schultes. Predicting mass transfer in packed columns. *Chemical Engineering Technology*, 16 :1–9, 1993.
- [6] C. Boyer and B. Fanget. Measurement of liquide flow distribution in trickle-bed reactor of large diameter with a new gamma-ray tomographic system. *Chem. Eng. Sci.*, 57 :1079–1089, 2002.
- [7] R. A. Brooks and G. Di Chiro. Principles of computer assisted tomography. *Phys. Med. Biol.*, 21 :689–732, 1976.
- [8] E. Brunazzi, G. Nardini, A. Paglianti, and L. Petarca. Interfacial area of mellapack packing : Absorption of 1,1,1-trichloroethane by genosorb 300. *Chemical Engineering and Technology*, pages 248–255, 1995.
- [9] E. Brunazzi and A. Viva. Distillation & absorption international conference. In *Experimental Investigation of Reactive Distillation Packing Katapak-SP 11 : Hydrodynamic Aspects and Size Effects*, London, 2006.
- [10] L. F. Gladden, M. H. M. Lim, M. D. Mantle, A. J. Sederma, and E. H. Stitt. Mri visualisation of two-phase flow in structured supports and trickle-bed reactors. *Catalysis Today*, 79-80 :203–210, 2003.
- [11] L. Götze, O. Bailer, Peter Moritz, and C. von Scala. Reactive distillation with katapak. *Catalysis Today*, pages 201–208, 2001.
- [12] C.W. Green. *Hydraulic characterization of structured packing via X-ray computed tomography*. PhD thesis, University of Texas at Austin, 2006.

- [13] C.W. Green, J. Faraone, J.K. Briley, R.B. Eldridge, R.A. Ketcham, and B. Nightingale. Novel application of x-ray computed tomography : determination of gas-liquid contact area and liquid holdup in structured packing. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 46 :5734–5753, 2007.
- [14] Achim Hoffmann, Christoph Noeres, and Andrzej Górak. Scale-up of reactive distillation columns with catalytic packings. *Chemical Engineering and Processing*, pages 383–395, 2004.
- [15] A. C. Kak and M. Slaney. Principles of computerized tomographic imaging. *IEEE*, 1988.
- [16] A. Kolodziej, M. Jaroszynski, H. Schoenmakersb, K. Althaus, E. Geisler, C. Ubler, and M. Kloecker. Dynamic tracer study of column packings for catalytic distillation. *Chemical Engineering and Processing*, 44 :661–670, 2005.
- [17] R. Krishna. Reactive separations : more ways to skin a cat. *Chemical Engineering Science*, pages 1491–1504, 2002.
- [18] M. H. M. Lim, A. J. Sederma, L. F. Gladden, and E. H. Stitt. New insights to trickle and pulse flow hydrodynamics in trickle-bed reactors using mri. *Chem. Eng. Sci*, 59 :5403–5410, 2004.
- [19] J. Mackowiak. Fluidodynamik von kolonnen mit modernen füllkörpern und packungen für gas/flüssigkeitssysteme. *Salle/Sauerländer, Frankfurt a.M.*, 1991.
- [20] P. Moritz and H. Hasse. Fluid dynamics in reactive distillation packing katapak-s. *Chemical Engineering Science*, pages 1367–1374, 1999.
- [21] Z. Olujic, A. B. Kamerbeek, and J. de Graauw. A corrugation geometry based model for efficiency of structured distillation packing. *Chemical Engineering and Processing*, 38 :683–695, 1999.
- [22] K. Onda, H. Takeuchi, and Y. Okumoto. Mass transfer coefficients between gas and liquid phases in packed columns. *Journal of Chemical Engineering of Japan*, 1 :56–62, 1968.
- [23] K. Onda, H. Takeuchi, and Y. Okumoto. Mass transfer coefficients between gas and liquid phases in packed columns. *Chemical Engineering Jpn.*, 1 :56–62, 1993.
- [24] S. Ratheesh and A. Kannan. Hold-up and pressure drop studies in structured packings with catalysts. *Chemical Engineering Journal*, 104 :45–54, 2004.
- [25] J.A. Rocha, J.L. Bravo, and J.R. Fair. Distillation columns containing structured packings : a comprehensive model for their performance.2.mass-transfer model. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 35 :1660–1667, 1996.
- [26] S. Roy, A. Kemoun, M. H Al-Dahhan, M. P. Dudukovic, T. B. Skourlis, and F. M. Dautzenberg. Countercurrent flow distribution in structured packing via computed tomography. *Chem. Eng. Process.*, 44 :59–69, 2004.

-
- [27] P. Bryan S. Robinson S. Adler, E. Beaver and J. Watson. Vision 2020 - separations roadmap. *American Institute of Chemical Engineers, New York*, 2000.
- [28] A.E. Saez and R.G. Carbonell. Hydrodynamic parameters for gas-liquid cocurrent flow in packed beds. *AIChE Journal*, 31 :52–62, 1985.
- [29] M.G. Shi and A. Mersmann. Effective interfacial area in packed columns. *German Chemical Engineering*, 8 :87–96, 1985.
- [30] J. Sieres, J. Fernandez-Seara, and F. J. Uhiá. Experimental characterization of the rectification process in ammonia-water absorption systems with a large specific area corrugated sheet structured packing. *International Journal of refrigeration*, 32 :1230–1240, 2009.
- [31] L. Spiegel and W. Meier. Correlations of the performance characteristics of the various mellapak types. *ICHEME Symp Ser*, page 104, 1987.
- [32] J. G. Stichlmair and T. Frey. Reactive distillation processes. *Chemical Engineering and Technology*, 22 :95–103, 1999.
- [33] G.P. Towler and S.J. Frey. *Reactive distillation*. Taylor and Francis, 2000.
- [34] D. Toye, M. Crine, and P. Marchot. Imaging of liquid distribution in reactive distillation packings with a new high-energy x-ray tomography. *Measurement Science and Technology*, 16 :2213–2220, 2005.
- [35] D. Toye, M. Crine G. L’Homme, and P. Marchot. Liquid distribution in a packed column : comparison between images obtained by x-ray computed tomography and by electrical capacitance tomography. *Proc.(CD-ROM) 4th Eur. Congr. on Chem. Eng.- ECCE4 (Granada, September) T.5-6/O-5.003.pdf*.
- [36] R.E. Tsai, P. Schultheiss, A. Kettner, J.C. Lewis, A.F. Seibert, R.B. Eldridge, and G.T. Rochelle. Influence of surface tension on effective packing area. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 47 :1253–1260, 2008.
- [37] R.E. Tsai, A. F. Seibert, R.B. Eldridge, and G.T. Rochelle. Influence of viscosity and surface tension on effective mass transfer area of structured packing. *Energy Procedia*, 1 :1197–1204, 2009.
- [38] B.W. van Hasselt, H.P.A. Calis, S.T. Sie, and C.M. van den Bleek. Liquid holdup in the three-levels-of-porosity reactor. *Chemical Engineering Science*, 54 :1405–1411, 1999.
- [39] H. J. Vinegar and S.L. Wellington. Tomographic imaging of three-phase flow experiments. *Rev. Sci. Instrum.*, 58 :96–107, 1987.
- [40] Aurora Viva. *Experimental Analysis and Modelling of novel catalytic structured packings for reactive separation processes*. PhD thesis, University of Pisa, 2008.
- [41] H. Jansen B. Kaibel T. Rietfort Z. Olujic, G. Frey and E. Zich. Distillation column internals related process intensification developments. *Proceedings of the Sixth*

Italian Conference on Chemical and Process Engineering, Pisa (Italy) in Chemical Engineering Transaction, 3 :367–372, 2003.