



**HAL**  
open science

# Mesure et caractérisation du transfert de chaleur dans les colonnes à bulles type slurry

Pierre-Emmanuel Béliard

► **To cite this version:**

Pierre-Emmanuel Béliard. Mesure et caractérisation du transfert de chaleur dans les colonnes à bulles type slurry. Alimentation et Nutrition. Université Claude Bernard - Lyon I, 2011. Français. NNT : 2011LYO10020 . tel-00846650

**HAL Id: tel-00846650**

**<https://theses.hal.science/tel-00846650>**

Submitted on 19 Jul 2013

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE DE L'UNIVERSITÉ DE LYON

Délivrée par

L'UNIVERSITÉ CLAUDE BERNARD LYON 1

ÉCOLE DOCTORALE DE CHIMIE

**DIPLÔME DE DOCTORAT EN GÉNIE DES PROCÉDÉS**

(arrêté du 7 août 2006)

soutenue publiquement le **14 janvier 2011**

par

**Pierre-Emmanuel BÉLIARD**

**MESURE ET CARACTÉRISATION DU TRANSFERT DE CHALEUR DANS  
LES COLONNES À BULLES TYPE SLURRY**

*Directeur de thèse : Daniel SCHWEICH (CNRS-LGPC)*

JURY : Christian JALLUT  
Faïçal LARACHI  
Gabriel WILD  
Francis LUCK  
Nicolas DROMARD  
Marie ROPARS  
Patrice CLÉMENT

CNRS-LAGEP, président  
Université Laval, Québec, rapporteur  
CNRS-Institut National Polytechnique de Lorraine, rapporteur  
TOTAL S.A., membre  
TOTAL Raffinage & Marketing, membre  
TOTAL Raffinage & Marketing, membre  
Commissariat à l'Énergie Atomique, membre







## Remerciements

Je voudrais tout d'abord remercier Daniel SCHWEICH pour sa patience, ses conseils et son soutien au cours de ces trois années. Cher Daniel, j'ai beaucoup appris à votre contact, d'abord en tant qu'élève-ingénieur à CPE Lyon, puis lors de ces trois années de thèse. En particulier, je n'oublierai jamais que pour faire de la recherche, il faut être « beau, riche et bien portant », mais que, comme c'est rarement le cas, il ne faut pas oublier de « penser hors de la boîte » pour avancer. Je n'oublierai pas non plus la rigueur scientifique que vous avez su me transmettre, ainsi que votre soutien dans les moments de doute.

Je tiens à remercier la société TOTAL et le Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) pour le financement de ces travaux. En particulier, je remercie Nicolas DROMARD et Francis LUCK, de la société TOTAL, pour leur disponibilité et leur participation active dans le suivi de cette thèse. Je remercie également Pierre MERCIER, Patrice TOCHON, et Patrice CLÉMENT pour leur accueil au sein du Laboratoire des Composants et Systèmes Thermiques (LETh) du CEA Grenoble.

Je suis reconnaissant aux professeurs Gabriel WILD et Faïçal LARACHI d'avoir accepté être les rapporteurs de ces travaux.

Je tiens à remercier Franck CHIARUCCI et l'ensemble des techniciens du LETh pour leur aide précieuse dans le montage et l'opération des deux colonnes à bulles utilisées pendant cette thèse.

Merci aussi à Charles-Alexis ASSELINEAU, élève-ingénieur de l'École des Mines d'Albi, pour son travail sur la modélisation thermique des colonnes à bulles effectué lors de son stage de fin d'étude, et à Charly RONGEON, stagiaire de l'IUT de Génie Chimique de Lyon, pour son aide lors du montage et du démarrage de la boucle SETH.

Trois années peuvent paraître longues, surtout à Grenoble, mais elles passent plus vite lorsqu'il y a une bonne ambiance au labo. Merci donc à Joaõ, Matthieu Baptiste, Romain, Marion, Pierre, Martin, Honda, Tristan, Florent, Mimo, Arnaud, Stéphane, Armel, Gérôme, Marie-Marie, Jérôme et tous ceux que j'oublie, pour votre bonne humeur, les discussions décalées, les parties de coinche le midi, les matches de foot et quelques soirées mémorables.

Enfin, je tiens à remercier ma famille, mes amis, et surtout toi Stéphanie, pour m'avoir encouragé et supporté pendant ses trois années.

Pierre-Emmanuel BELIARD



## Résumé

Ce travail concerne la mesure et la caractérisation du transfert thermique à la paroi externe d'un faisceau de tubes de refroidissement inséré dans des colonnes à bulles type « slurry ». Contrairement aux études réalisées jusqu'à présent, le réacteur est étudié comme un échangeur de chaleur calandre-tubes. La valeur du coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement est estimée, en régime thermique permanent, à partir des équations de la chaleur.

L'utilisation d'une colonne de 0,15 m de diamètre et de 4 m de haut, dans laquelle sont immergés deux tubes en U d'environ 3 cm de diamètre externe, a permis de mettre au point la métrologie nécessaire à notre étude. L'eau a été utilisée comme fluide de refroidissement. Le mélange diphasique air-huile Syltherm XLT®, puis le mélange triphasique air-huile Syltherm XLT®-microbilles d'alumine poreuses ( $d_s \sim 80 \mu\text{m}$ ), ont servi de fluides modèles. L'incertitude associée à la détermination des coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement est pratiquement constante pour l'ensemble des conditions opératoires testées au cours de nos travaux (environ 8 %).

Pour le système diphasique, les variations de la valeur du coefficient de transfert de chaleur avec la vitesse superficielle du gaz ont pu être corrélées par une loi semblable à celle établie par *Deckwer (1980)*. Cependant, la valeur de la constante de corrélation est inférieure à celle donnée par *Deckwer et al. (1980)*, et semble dépendre de l'orientation du faisceau de tubes par rapport à l'axe de la colonne. Un tel comportement n'a jamais été rapporté dans la littérature à notre connaissance, mais indique que l'écart du faisceau de tubes à un faisceau idéal (i.e. parfaitement droit et symétrique) peut être un paramètre crucial pour le transfert de chaleur, au moins dans une colonne à bulles de petite taille. Les corrélations obtenues ont permis de retrouver numériquement les profils axiaux de température dans notre section d'essai.

Pour le système triphasique, la variation du coefficient de transfert de chaleur avec l'augmentation de la concentration en solide présente un effet de seuil : la valeur du coefficient ne varie pas de façon significative jusqu'à une concentration massique d'environ 18,8 %, avant de diminuer d'environ 10 % pour une concentration massique de 21,3 %. Ce résultat est surprenant. Les variations du coefficient de transfert de chaleur avec la concentration en solide rapportées dans la littérature sont en effet souvent contradictoires, mais sont toujours continues dans la gamme de concentrations testée lors de nos travaux.

La métrologie mise au point a été implantée dans une colonne de 1 m de diamètre et de 5 m de haut, dans laquelle sont immergés 24 tubes en U d'environ 6 cm de diamètre externe et qui est jugée représentative d'une colonne à bulles type « slurry » pour le procédé Fischer-Tropsch. Cette unité est encore en phase de qualification, mais les premiers résultats indiquent que la caractérisation thermique de l'installation sera plus délicate que celle utilisée précédemment, confirmant la nécessité de l'étude du transfert thermique dans de tels réacteurs.

**Mots clés :** Transfert de chaleur, métrologie, colonne à bulles à bulles type « slurry », Fischer-Tropsch



## Abstract

This work investigates the measure and characterisation of heat transfer in slurry bubble column reactors equipped with a bundle of cooling tubes. Instead of using a local probe to measure heat transfer coefficient, the reactor is considered as a shell-tube heat exchanger. The value of the shell-tube heat transfer coefficient is estimated at thermal steady-state regime using heat transfer equations.

A 15 cm in diameter, 4 m high bubble column, equipped with a two U-tubes (3 cm O.D.) bundle, has been used to assess the metrology selected to determine the value of the shell-tube heat transfer coefficient. The cooling fluid was water. Air-Syltherm XLT® heat transfer fluid and air-Syltherm XLT® heat transfer fluid-porous alumina particles ( $d_s \sim 80 \mu\text{m}$ ) were successively used as shell fluids. The uncertainty of our measures has been estimated to be around 8 % for all experimental conditions.

The variations of the shell-tube heat transfer coefficient with superficial gas velocity in the two-phase bubble column can be modelled using the well-known correlation by *Deckwer (1980)*. However, a smaller constant value than the one indicated by *Deckwer et al. (1980)* was obtained and it was found to be dependent upon the orientation of the tube bundle relatively to the column axis. This has never been reported in the literature to our knowledge and implies that any difference relatively to the ideal tube bundle – perfectly straight and symmetric – might be critical for heat transfer, at least in small diameter bubble columns. Nevertheless, the obtained correlations enable the modelling of the axial temperature profiles in our test section.

Addition of solid particles has little effect on heat transfer for solid concentrations below 18.8 %w/w. A further increase up to 21.3 %w/w induced a 10 % decrease of the value of the shell-tube heat transfer coefficient. This was surprising, as existing literature results display continuous variations of the heat transfer coefficient values in the range of solid concentrations tested, even though trends of variation could be opposite.

The assessed metrology was implemented into a 1 m in diameter, 5 m high bubble column equipped with a 24 U-tubes (6 cm O.D.) bundle. This pilot plant was considered to be large enough to mock up a slurry bubble column reactor for the Fischer-Tropsch process. It is still in a qualification period, so that no significant results could be presented, yet. However, first results indicate that thermal characterisation will be more complex than for the smaller diameter column, which underlines the necessity of such a study.

**Keywords:** Heat transfer, metrology, slurry bubble column reactor, Fischer-Tropsch

# Sommaire

<b>CHAPITRE I : INTRODUCTION .....</b>	<b>1</b>
I-1 CONTEXTE .....	1
I-2 SYNTHÈSE FISCHER-TROPSCH DANS LES COLONNES A BULLES TYPE SLURRY : PRINCIPES ELEMENTAIRES ....	1
I-2.1 Réaction .....	1
I-2.2 Les colonnes à bulles type « slurry » .....	3
I-2.3 Hydrodynamique des colonnes à bulles .....	4
I-2.4 Transfert de chaleur dans les colonnes à bulles .....	5
I-3 CARACTERISATION DU TRANSFERT DE CHALEUR DANS LES COLONNES A BULLES .....	5
I-4 PROBLEMATIQUE .....	8
<b>CHAPITRE II : MESURE DES COEFFICIENTS DE TRANSFERT DE CHALEUR DANS LES COLONNES A BULLES .....</b>	<b>11</b>
II-1 PROBLEMATIQUE .....	11
II-2 MESURE DES COEFFICIENTS DE TRANSFERT DE CHALEUR DANS LES COLONNES A BULLES .....	11
II-2.1 Choix d'une méthode de mesure .....	11
II-2.2 Méthode globale .....	13
II-2.2.1 Hypothèses restrictives .....	13
II-2.2.2 Coefficient global de transfert de chaleur .....	14
II-2.2.2.1 Evaluation d'un coefficient par partie droite de tube .....	14
II-2.2.2.2 Evaluation d'un coefficient pour le tube en U .....	16
II-2.2.3 Coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe du tube .....	17
II-2.2.3.1 Evaluation d'un coefficient par partie droite de tube .....	17
II-2.2.3.2 Evaluation d'un coefficient pour le tube en U .....	18
II-2.3 Conséquence pour l'étude expérimentale .....	18
II-3 LA BOUCLE HORTHEMS .....	20
II-3.1 Phase liquide utilisée .....	21
II-3.1.1 Choix .....	21
II-3.1.2 Conséquences pour l'hydrodynamique de la colonne .....	21
II-3.1.2.1 Influence de la masse volumique .....	21
II-3.1.2.2 Influence de la viscosité .....	21
II-3.1.2.3 Influence de la tension superficielle .....	21
II-3.1.2.4 Influence combinée des propriétés physiques de la phase liquide .....	22
II-3.1.2.5 Conclusions .....	22
II-3.2 Description générale de l'installation .....	23
II-3.2.1 Circuit 100 – Colonne côté calandre .....	23
II-3.2.1.1 Colonne .....	23
II-3.2.1.2 Pompe .....	23
II-3.2.1.3 Echangeur de chaleur externe .....	24
II-3.2.1.4 Réservoir tampon .....	24
II-3.2.2 Circuit 200 – Gaz .....	24
II-3.2.3 Circuit 300 – Liquide de refroidissement .....	25
II-3.3 Conditions opératoires .....	25
II-3.4 Instrumentation .....	26
II-3.4.1 Acquisition des données .....	26
II-3.4.2 Mesures de températures .....	27
II-3.4.2.1 Fluide côté calandre .....	27
II-3.4.2.2 Gaz .....	27
II-3.4.2.3 Eau de refroidissement .....	27
II-3.4.3 Mesures de débit .....	29
II-3.4.3.1 Débitmètre massique à effet Coriolis .....	29
II-3.4.3.2 Débitmètre massique à effet thermique .....	29
II-3.4.3.3 Débitmètres électromagnétiques .....	29
II-3.4.3.4 Débit d'huile sortant de la chaudière .....	29
II-3.4.4 Mesures de pression .....	29
II-3.4.4.1 Capteurs de pression absolue .....	30
II-3.4.4.2 Capteurs de pression différentielle .....	30
II-3.4.5 Récapitulatif .....	31
<b>CHAPITRE III : VALIDATION EXPERIMENTALE DE LA METROLOGIE .....</b>	<b>35</b>
III-1 INTRODUCTION .....	35

III-2 INFLUENCE DE LA VITESSE SUPERFICIELLE DU GAZ.....	35
III-2.1 Hydrodynamique de la colonne.....	35
III-2.1.1 Résultats expérimentaux.....	36
III-2.1.2 Conclusions.....	38
III-2.2 Etude thermique.....	38
III-2.2.1 Températures dans la colonne.....	38
III-2.2.2 Températures d'entrée de l'eau industrielle.....	39
III-2.2.3 Ecart de température au retournement des tubes.....	40
III-2.2.4 Bilan thermique.....	41
III-2.2.5 Coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes.....	42
III-2.2.5.1 Evaluation d'un coefficient par partie droite de tube.....	42
III-2.2.5.2 Evaluation d'un coefficient par tube en U.....	43
III-2.2.6 Estimation des incertitudes.....	43
III-2.2.6.1 Incertitudes sur les grandeurs mesurées.....	43
III-2.2.6.2 Incertitudes sur les grandeurs calculées.....	44
III-2.2.7 Analyse des résultats.....	45
III-2.2.7.1 Evaluation d'un coefficient par partie droite de tube.....	45
III-2.2.7.2 Evaluation d'un coefficient par tube en U.....	48
III-2.2.8 Conséquences pour les coefficients de transfert de chaleur.....	49
III-2.2.8.1 Evaluation d'un coefficient par partie droite de tube.....	49
III-2.2.8.2 Evaluation d'un coefficient par tube en U.....	50
III-3 INFLUENCE DE L'ORIENTATION DU FAISCEAU DE TUBES.....	50
III-3.1 Conditions opératoires.....	50
III-3.2 Rétention gazeuse.....	51
III-3.3 Bilan thermique.....	51
III-3.4 Ecart de température au retournement des tubes.....	52
III-3.5 Coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes.....	53
III-3.5.1.1 Evaluation d'un coefficient par partie droite de tube.....	53
III-3.5.1.2 Evaluation d'un coefficient par tube en U.....	55
III-3.5.1.3 Conclusions.....	56
III-4 MODELISATION ET SIMULATION.....	57
III-4.1 Modélisation des résultats expérimentaux.....	57
III-4.1.1 Modèle.....	57
III-4.1.2 Applications à la boucle HORTHEMS.....	57
III-4.2 Simulation numérique.....	59
III-4.2.1 Modélisation mathématique.....	59
III-4.2.2 Comparaison avec les résultats expérimentaux.....	61
III-4.2.2.1 Essais 1 à 9.....	61
III-4.2.2.2 Essais 10 à 14.....	62
III-4.3 Conclusions.....	63
III-5 COLLABORATION.....	64
III-6 CONCLUSION.....	65
<b>CHAPITRE IV : ETUDE D'UNE COLONNE A BULLES TYPE « SLURRY ».....</b>	<b>69</b>
IV-1 HYDRODYNAMIQUE ET TRANSFERT DE CHALEUR DANS LES COLONNES A BULLES TYPE « SLURRY ».....	69
IV-1.1 Hydrodynamique.....	69
IV-1.2 Transfert thermique.....	69
IV-2 LE SOLIDE DANS LA BOUCLE HORTHEMS.....	70
IV-2.1 Choix du solide.....	70
IV-2.2 Mise en œuvre.....	71
IV-2.2.1 Chargement.....	71
IV-2.2.2 Attrition des particules.....	71
IV-3 INFLUENCE DE LA CONCENTRATION EN SOLIDE SUR LE TRANSFERT DE CHALEUR.....	73
IV-3.1 Conditions opératoires.....	73
IV-3.2 Coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement.....	74
IV-4 CONCLUSION.....	75
<b>CHAPITRE V : CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES.....</b>	<b>79</b>
V-1 CONCLUSIONS.....	79
V-2 PERSPECTIVES.....	80
<b>ANNEXE A : LISTE DES FIGURES.....</b>	<b>85</b>
<b>ANNEXE B : LISTE DES TABLEAUX.....</b>	<b>89</b>

---

<b>ANNEXE C : PROPRIETES PHYSIQUES DES FLUIDES EN FONCTION DE LA TEMPERATURE.....</b>	<b>91</b>
C-1 EAU LIQUIDE ( $P_{ATM}$ ).....	91
C-2 HUILE SYLTHERM XLT® ( $P_{ATM}$ ).....	91
C-3 AIR SEC ( $P_{ATM}$ ).....	92
C-4 HUILE THERMINOL SP® ( $P_{ATM}$ ).....	92
C-5 ALUMINE (25°C, $P_{ATM}$ ).....	93
C-6 SLURRY ( $P_{ATM}$ ).....	93
<b>ANNEXE D : ESTIMATION DE LA HAUTEUR DE LA COLONNE DE LA BOUCLE HORTHENS .....</b>	<b>95</b>
<b>ANNEXE E : DIMENSIONNEMENT DE L'ECHANGEUR COAXIAL CINTRE .....</b>	<b>97</b>
E-1 ECART DE TEMPERATURE MOYEN LOGARITHMIQUE .....	97
E-2 COEFFICIENT GLOBAL DE TRANSFERT DE CHALEUR.....	97
E-3 LONGUEUR NECESSAIRE POUR L'ECHANGE.....	98
E-4 INFLUENCE DE L'UTILISATION D'UN SLURRY.....	98
E-5 CONCLUSION .....	99
<b>ANNEXE F : ESTIMATION DE LA CONCENTRATION VOLUMIQUE EN SOLIDE .....</b>	<b>101</b>
<b>ANNEXE G : ARTICLE PUBLIE DANS LE CANADIAN JOURNAL OF CHEMICAL ENGINEERING .....</b>	<b>103</b>
<b>ANNEXE H : REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....</b>	<b>117</b>



## Nomenclature

Symbole	Unité	Description
$b$	-	Ecart au bilan thermique
$C$	-	Constante
$C_p$	$\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$	Capacité calorifique
$d$	m	Taille (bulle, particule,...)
$D$	m	Diamètre
$D_e$	m	Diamètre externe des tubes de refroidissement
$D_i$	m	Diamètre interne des tubes de refroidissement
$F$	-	Facteur correctif du $\Delta T_{ML}$ (compris entre 0 et 1)
$Fr$	-	Nombre de Froude, $u^2/gD$
$g$	$\text{m}^2.\text{s}^{-1}$	Accélération de la pesanteur
$H$	m	Hauteur
$h$	$\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$	Coefficient de transfert de chaleur
$K$	$\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$	Coefficient global de transfert de chaleur
$m$	kg	Masse
$\dot{m}$	$\text{kg.s}^{-1}$	Débit massique
$N$	-	Nombre de points de mesure
$Nu$	-	Nombre de Nusselt, $hD/\lambda$
$P$	-	Paramètre adimensionnel intervenant dans la détermination du facteur correctif $F$
$P_{atm}$	bar	Pression atmosphérique
$Pr$	-	Nombre de Prandtl, $\mu C_p/\lambda$
$P_{sat}$	bar	Pression de saturation
$Q$	$\text{m}^3.\text{s}^{-1}$	Débit volumique
$R$	-	Paramètre adimensionnel intervenant dans la détermination du facteur correctif $F$
$Re$	-	Nombre de Reynolds, $\rho u D/\mu$
$R_{th}$	$\text{K.m}^2.\text{W}^{-1}$	Résistance au transfert de chaleur
$S_e$	$\text{m}^2$	Surface externe d'échange de chaleur
$S_{libre}$	$\text{m}^2$	Section libre de passage dans la colonne (i.e. section de la colonne, moins les sections des internes éventuels)
$St$	-	Nombre de Stanton, $h/\rho_L C_{pL} u_G$
$T$	K	Température
$u$	$\text{m.s}^{-1}$	Vitesse superficielle dans les conditions d'entrée dans la colonne
$V$	$\text{m}^3$	Volume
$z$	m	Altitude

## Lettre grecques

Symbole	Unité	Description
$\alpha$	-	Facteur intervenant dans le calcul de l'incertitude associée à l'écart de température moyen logarithmique
$\delta_c(Y)$	Unité S.I.	Incertitude combinée sur le calcul d'une grandeur $Y$
$\varepsilon$	-	Fraction volumique
$\Delta H_r$	$\text{J.mol}^{-1}$	Enthalpie de réaction
$\Delta P$	bar	Différence de pression statiques / Pertes de charge
$\Delta T$	K	Ecart de température
$\Delta T_{ML}$	K	Ecart de température moyen logarithmique
$\lambda$	$\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$	Conductivité thermique
$\Phi$	W	Flux thermique
$\mu$	Pa.s	Viscosité dynamique
$\omega$	-	Fraction massique
$\rho$	$\text{kg.m}^{-3}$	Masse volumique
$\sigma$	$\text{N.m}^{-1}$	Tension superficielle

## Indices/Exposants

<b>Symbole</b>	<b>Description</b>
<i>air</i>	Air comprimé
<i>apR</i>	Après le retournement du tube en U
<i>avR</i>	Avant le retournement du tube en U
<i>c</i>	Colonne
<i>court</i>	Tube en U « court »
<i>d</i>	Partie droite descendante d'un tube en U
<i>e</i>	Entrée de la section d'essai, relativement au sens de circulation du fluide considéré
<i>eau</i>	Eau de refroidissement circulant à l'intérieur des tubes
<i>air</i>	Air comprimé
<i>g</i>	Global
<i>G</i>	Gaz
<i>inox</i>	Acier inoxydable
<i>L</i>	Phase liquide
<i>long</i>	Tube en U « long »
<i>m</i>	Partie droite montante d'un tube en U
<i>M</i>	Mélange diphasique (gaz-liquide) ou triphasique (gaz-liquide-solide) circulant dans la calandre
<i>pe</i>	Paroi externe du tube en U
<i>pi</i>	Paroi interne du tube en U
<i>PMMA</i>	Polyméthacrylate de méthyle (paroi de la colonne de la boucle HORTHENS)
<i>porosité</i>	Porosité des particules solides.
<i>r</i>	Réaction
<i>retournement</i>	Partie en U d'un tube
<i>s</i>	Sortie de la section d'essai, relativement au sens de circulation du fluide considéré
<i>S</i>	Solide
<i>SL</i>	Slurry
<i>SP</i>	Huile Therminol SP®
<i>sol</i>	Mélange composé des squelettes des particules et de phase liquide baignant leurs pores
<i>XLT</i>	Huile Syltherm XLT®
<i>tube</i>	Tube en U, considéré dans son ensemble







# Chapitre I : Introduction

## I-1 Contexte

Dans le domaine des transports, la prise de conscience écologique et la diminution des réserves de pétrole brut incitent à se tourner vers des sources d'énergies alternatives. Cependant, les technologies existantes, comme les batteries ou les piles à combustible, ne sont pas encore arrivées à maturité. De fait, le secteur des transports dépend encore à plus de 98 % des produits pétroliers, les carburants fossiles permettant une autonomie appréciable des véhicules (plus de 600 km). Pour le transport routier, l'essence et le gazole couvrent 98 % de l'énergie utilisée à l'échelle mondiale. En Europe, la diversification des carburants pour le transport a réduit cette part à 96 % (*Tchung-Ming et Vinot, 2009*). À l'heure actuelle, ces carburants alternatifs sont notamment le gaz de pétrole liquéfié (GPL), mélange de butane et de propane issu du raffinage du pétrole et du traitement du gaz naturel, et les biocarburants de première génération (éthanol et esters méthyliques). Leur utilisation reste limitée (1 % et 1,5 %, respectivement), bien qu'elle soit appelée à augmenter dans les années à venir. À moyen terme cependant, la production de carburants liquides peut aussi être envisagée à partir d'autres sources carbonées fossiles (charbon, gaz naturel) ou de biomasse, par exemple à l'aide des procédés Fischer-Tropsch.

Les procédés Fischer-Tropsch comportent trois grandes étapes, communes à toutes les charges envisageables :

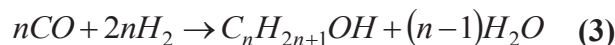
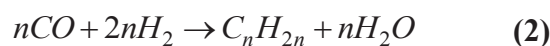
- ✓ la gazéification, qui permet de transformer la source carbonée en gaz de synthèse, mélange de monoxyde de carbone (CO) et d'hydrogène (H<sub>2</sub>) ;
- ✓ la synthèse Fischer-Tropsch, qui permet l'obtention d'hydrocarbures (essentiellement) à partir du gaz de synthèse ;
- ✓ l'amélioration de produits de réaction par des techniques de raffinage traditionnelles, pour les transformer en gazole et kérosène.

La première utilisation commerciale d'un tel procédé a eu lieu en Allemagne dans les années 1930. Plus de 10 000 barils<sup>1</sup> par jour d'hydrocarbures étaient produits à partir de charbon. De plus amples détails sur le développement des différents procédés sont disponibles dans l'article de *Davis (2002)* et le livre de *Steynberg et Dry (2004)*.

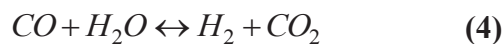
## I-2 Synthèse Fischer-Tropsch dans les colonnes à bulles type slurry : principes élémentaires

### I-2.1 Réaction

La synthèse Fischer-Tropsch a été découverte en 1923 par Franz Fischer et Hans Tropsch (*Hugues, 2009*). Les réactions ayant lieu durant la synthèse sont complexes, mais peuvent être simplifiées de la façon suivante (*Steynberg et Dry, 2004*) :



<sup>1</sup> 1 baril = 159 L



La réaction principale est une « hydrogénation catalytique du monoxyde de carbone », qui conduit essentiellement à la synthèse de paraffines (équation (1)) et d'oléfines (équation (2)). Ces produits sont intéressants car valorisables en distillats moyens très demandés pour le marché des carburants. Ils sont de plus de très bonne qualité (indice de cétane supérieur à 60-65) et ne contiennent pas de composés aromatiques (non formés lors de la synthèse), ni de soufre (purification absolue du gaz de synthèse), contrairement aux composés issus du raffinage du pétrole brut (*Steynberg et Dry, 2004; Hugues, 2009*). Par ailleurs, des composés oxygénés, essentiellement des alcools, peuvent également être produits lors de la synthèse (équation (3)). Une autre réaction secondaire possible est la conversion de l'eau produite lors de la synthèse, dite réaction de « Water Gas Shift » (WGS) en anglais<sup>2</sup> (équation (4)). Les réactions (1), (2) et (3) sont toutes fortement exothermiques. L'enthalpie moyenne de réaction dans les conditions du procédé industriel est d'environ -172 kJ par mole de monoxyde de carbone consommée (*Maretto et Krishna, 2001*).

Les catalyseurs les plus couramment utilisés sont essentiellement de deux types :

- ✓ du cobalt, dispersé sur des supports de surfaces élevées (silice ou alumine), avec des promoteurs (métaux nobles) ;
- ✓ du fer, généralement fondu puis broyé.

Ils sont sensibles aux poisons comme le soufre, ce qui implique une purification absolue du gaz de synthèse (*Steynberg et Dry, 2004*). Les catalyseurs à base de cobalt présentent l'avantage, par rapport à ceux à base de fer, de limiter fortement la réaction WGS (*van der Laan, 1999*).

Le rendement de la synthèse dépend principalement de la composition du gaz de synthèse (rapport CO/H<sub>2</sub>), qui varie en fonction de la source carbonée utilisée pour le produire, de la formulation du catalyseur, et des conditions opératoires, en particulier de la température (*Steynberg et Dry, 2004*). Les effets de ces différents paramètres sont interdépendants et modifient les équilibres chimiques et physiques, ce qui complique la conception et l'optimisation des réacteurs utilisés pour conduire la synthèse. Ces réacteurs doivent entre autres être capables :

- ✓ d'évacuer rapidement la chaleur générée par la réaction, afin d'assurer une utilisation optimale du volume du réacteur, et d'éviter un emballement thermique et les points de surchauffe<sup>3</sup> ;
- ✓ d'assurer une distribution uniforme du gaz de synthèse dans le réacteur, là encore pour éviter un profil de température non uniforme au sein du réacteur.

Plusieurs types de réacteurs ont été développés pour répondre à ces besoins. Ils peuvent être regroupés en deux catégories. Dans la première, le catalyseur est statique au sein du réacteur, comme par exemple dans les réacteurs à lit fixe ruisselant. Dans la seconde, le catalyseur est transporté par une phase liquide continue, comme dans les colonnes à bulles

---

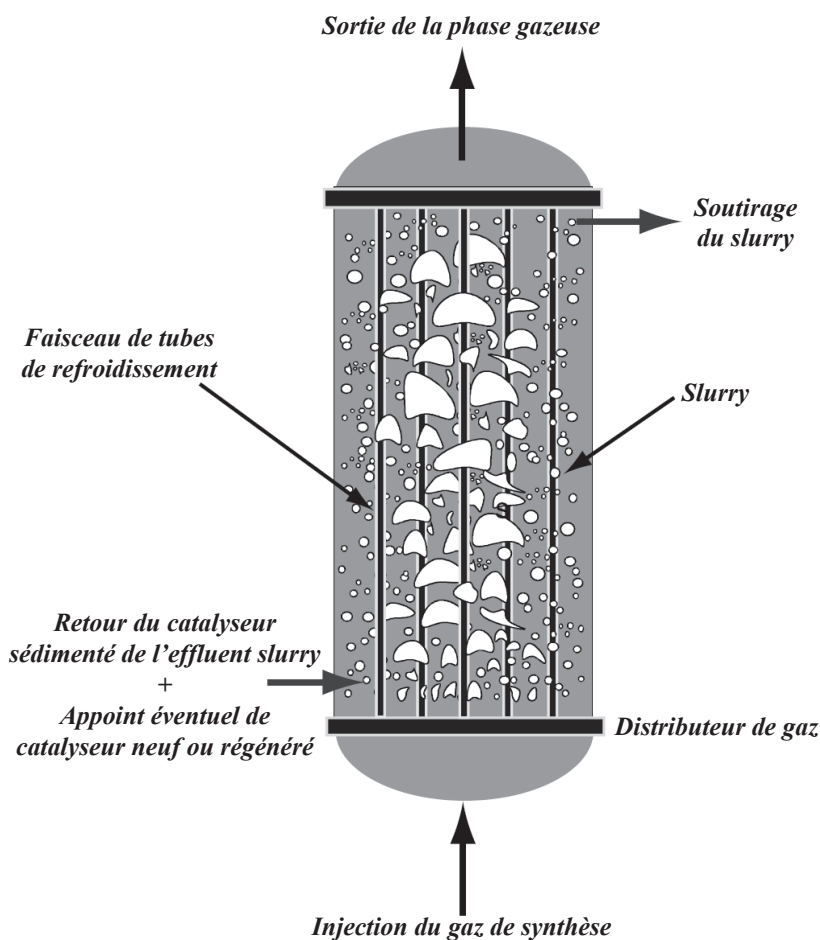
<sup>2</sup> En français, cette réaction est connue sous le nom de « réaction du gaz à l'eau » ou de Dussan. Nous conserverons la dénomination anglaise imposée par l'usage.

<sup>3</sup> Ils entraînent une perte de sélectivité par méthanation et peuvent engendrer la désactivation (par formation de coke) et la dégradation du catalyseur

type « slurry » (de Swart, 1996). C'est à ce type de réacteur que notre étude s'intéresse plus particulièrement.

### ***I-2.2 Les colonnes à bulles type « slurry »***

Une colonne à bulles est un réacteur généralement cylindrique, de hauteur nettement supérieure au diamètre, dans lequel du gaz réactif est injecté dans un liquide (ou un mélange liquide-solide), qui constitue la phase continue alors que le gaz est la phase dispersée. L'injection du gaz se fait généralement en pied de colonne. L'ascension des bulles de gaz dans le réacteur assure le mélange de la phase liquide (ou du mélange liquide-solide). Dans le cas d'une suspension liquide-solide, si la taille moyenne des particules est inférieure à 100  $\mu\text{m}$ , on emploie fréquemment le terme anglo-saxon de « slurry » (boue) pour désigner la suspension et, par extension, pour qualifier la colonne à bulles (Kölbel et Ralek, 1980). Nous conserverons ce terme par la suite du fait de son emploi même en français. Une colonne à bulles peut fonctionner en mode fermé ou en mode continu. En mode fermé, la phase liquide (ou le slurry) ne quitte jamais le réacteur. En mode continu, la phase liquide est recirculée, en totalité ou en partie, de manière co-courante avec la phase gazeuse.



**Figure I.1** Schéma représentatif d'une colonne à bulles type « slurry », d'après Krishna (2000)©

Une colonne à bulles type « slurry » pour le procédé Fischer-Tropsch est typiquement un échangeur-réacteur tubes-calandre triphasique (cf. Figure I.1). Pour des raisons économiques et logistiques, une colonne industrielle doit être capable de produire au

minimum 40 000 barils par jour d'hydrocarbures de synthèse (*Steynberg et Dry, 2004*). Les dimensions caractéristiques et conditions opératoires d'un tel réacteur ont été indiquées par *Maretto et Krishna (1999)* :

- ✓ le diamètre de la colonne est compris entre 6 et 10 m ;
- ✓ la hauteur de la colonne est de 30 à 40 m ;
- ✓ 5 000 à 8 000 tubes de refroidissement sont immergés verticalement dans la calandre ;
- ✓ selon les procédés, la pression dans le réacteur est comprise entre 20 et 40 bars, et la température entre 220 et 250°C ;
- ✓ la concentration volumique en solide est supérieure ou égale à 30 % afin d'atteindre la productivité souhaitée.

Le mélange triphasique, composé des réactifs (CO et H<sub>2</sub>), des produits de la réaction (majoritairement liquides dans les conditions du procédé), et du catalyseur, circule à l'intérieur de la calandre. La colonne fonctionne en mode continu pour le slurry, car cela permet d'ajouter et de soutirer en permanence du catalyseur de manière à maintenir son activité sans avoir besoin d'arrêter le réacteur (*Steynberg et Dry, 2004*). La chaleur de réaction est en général évacuée par de l'eau sous pression, circulant à l'intérieur des tubes de refroidissement (*Suh et Deckwer, 1996*). En se vaporisant le long des tubes, elle permet d'assurer une température constante à la paroi externe de ceux-ci.

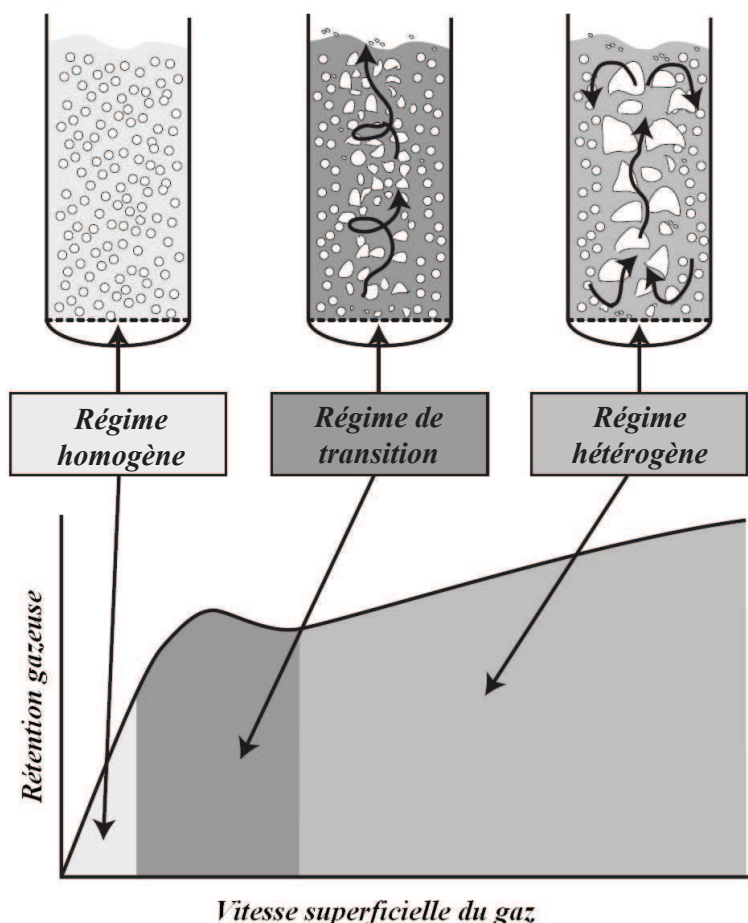
### ***I-2.3 Hydrodynamique des colonnes à bulles***

L'hydrodynamique des colonnes à bulles est caractérisée par différents régimes d'écoulement, qui dépendent principalement de la vitesse superficielle du gaz,  $u_G$ , définie comme le rapport entre le débit volumique du gaz, **dans les conditions de pression et de température en entrée de colonne**, et la section libre de passage dans la colonne (i.e. section de la colonne **moins les sections des internes éventuels**).

$$u_G = \frac{Q_G}{S_{\text{libre}}} \quad (5)$$

Outre la vitesse superficielle du gaz, les propriétés physiques de la phase liquide (en particulier, la viscosité et la tension superficielle), la géométrie de la colonne, et, le cas échéant, la concentration en particules solides modifient le comportement hydrodynamique des colonnes à bulles (*Krishna, 2000*).

Les régimes hydrodynamiques des colonnes à bulles diphasiques gaz-liquide ont été définis par *Ellenberger et Krishna (1994)*, par analogie avec les lits fluidisés gaz-solide. Cette description a été étendue par la suite aux colonnes à bulles triphasiques. Il est en effet courant de considérer la suspension liquide-solide comme une phase pseudo-homogène analogue à un liquide à cause de la petite taille des particules solides (*Deckwer et al., 1980*). Lorsque la vitesse superficielle du gaz augmente, la rétention gazeuse, rapport entre le volume occupé par la phase gazeuse et le volume occupé par les phases gazeuse, liquide, et éventuellement solide (dans le cas d'un slurry), varie. Se distinguent alors successivement les régimes homogène, de transition et hétérogène (cf. Figure I.2). Pour la synthèse Fischer-Tropsch, c'est le régime hétérogène qui prévaut pour des raisons de productivité et d'agitation propice au transfert de chaleur et à la mise en suspension du catalyseur.



**Figure I.2** Représentation qualitative des régimes hydrodynamiques dans une colonne à bulles, d'après Urseanu (2000)©

### I-2.4 Transfert de chaleur dans les colonnes à bulles

Le transfert de chaleur entre le mélange di- ou triphasique circulant dans une colonne à bulles et la paroi externe de tubes de refroidissement immergés en son sein est dépendant du régime hydrodynamique dans lequel se trouve la colonne (Zahradník et Fialová, 1996). En particulier, l'évolution du coefficient de transfert de chaleur avec la vitesse superficielle du gaz est semblable à celle de la rétention gazeuse (cf. Figure I.2). L'augmentation du nombre et de la taille des bulles est responsable de l'augmentation de la turbulence dans la colonne, qui accroît à son tour le transfert de chaleur (Deckwer, 1980).

Dans les colonnes industrielles, où le régime hétérogène prévaut, le coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement est alors de l'ordre de  $1\,000\text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$  (Krishna, 2000).

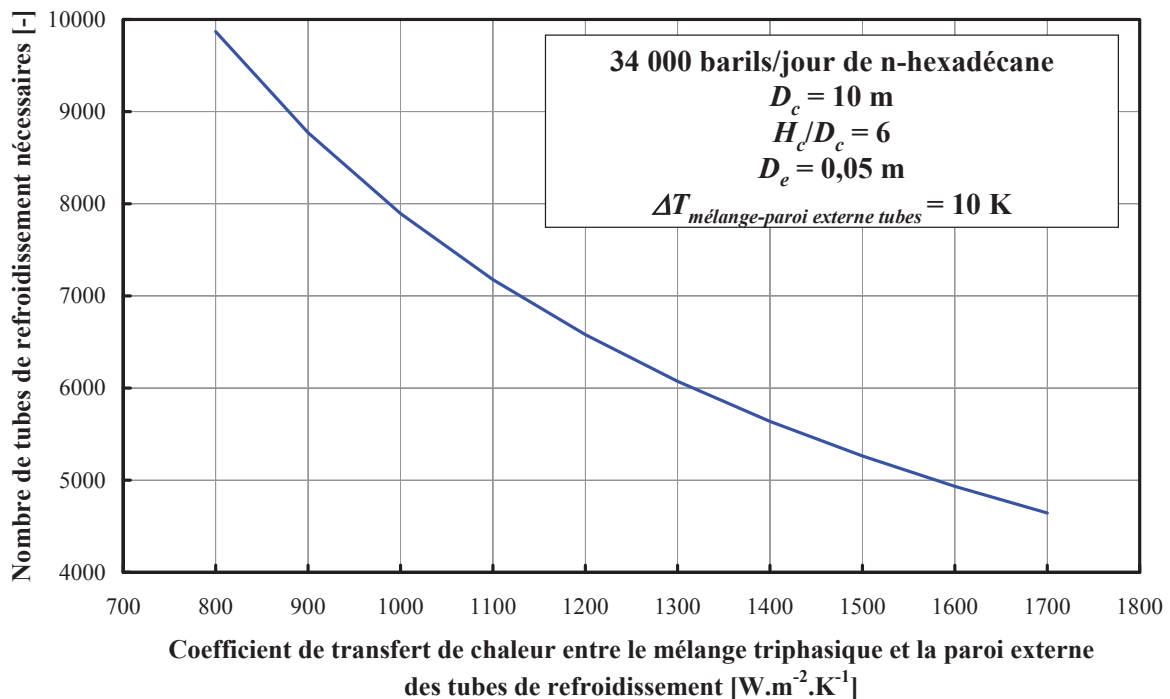
## I-3 Caractérisation du transfert de chaleur dans les colonnes à bulles

La puissance générée par unité de volume, calculée à partir de l'enthalpie de réaction et de la production souhaitée, permet d'estimer la surface d'échange par unité de volume de réacteur nécessaire pour évacuer la chaleur générée par une réaction exothermique (Suh et Deckwer, 1996). Pour fixer un ordre de grandeur, considérons la production de 34 000 barils par jour de n-hexadécane ( $\text{C}_{16}\text{H}_{34}$ ) par la synthèse Fischer-Tropsch. Le n-hexadécane a été

utilisé comme phase liquide modèle par *Maretto et Krishna (2001)* pour leur modélisation de la synthèse dans une colonne à bulles type « slurry ». Quant à la production choisie, elle correspond à la productivité de l'unité ORYX (deux SBCR de 10 m de diamètre, 60 m de haut), développée par SASOL et QATAR PETROLEUM, pour démontrer la faisabilité, à l'échelle industrielle, du procédé G-t-L (« Gas-to-Liquids », où le gaz naturel est la source carbonée dont est issu le gaz de synthèse<sup>4</sup>). La puissance dégagée par unité de volume par la synthèse du n-hexadécane est d'environ **138 kW par mètre cube de n-hexadécane produit**. Pour une productivité équivalente à celle de l'unité ORYX, **744 MW** doivent donc être évacués du réacteur. En supposant un coefficient moyen d'échange de chaleur entre le mélange triphasique et les parois externes du système de refroidissement de **1 000 W.m<sup>-2</sup>.K<sup>-1</sup>**, et un écart de température entre le mélange triphasique et les parois externes du système de refroidissement de **10 K**, la surface d'échange par unité de volume de réacteur nécessaire pour évacuer la chaleur du réacteur est d'environ **16 m<sup>2</sup>.m<sup>-3</sup> de réacteur (tubes inclus)**.

La Figure I.3 présente la variation du nombre de tubes de refroidissement ( $D_e = 0,05$  m) nécessaires pour évacuer la chaleur dégagée par la synthèse de 34 000 barils de n-hexadécane par le procédé Fischer-Tropsch en fonction du coefficient moyen de transfert de chaleur entre le mélange triphasique et la paroi externe des tubes, en supposant un écart de température entre le mélange et la paroi externe des tubes constant. Le nombre de tubes de refroidissement dépend directement de la surface d'échange nécessaire,  $S_e$ , qui se calcule de la façon suivante.

$$S_e = \frac{\Phi_r}{\Delta T_{\text{mélange-tubes}}} \cdot \frac{1}{h_M} \quad (6)$$



**Figure I.3** Nombre de tubes de refroidissement en fonction du coefficient moyen de transfert de chaleur entre le mélange triphasique et des tubes de 0,05 m de diamètre externe

<sup>4</sup> **Source** : [www.hydrocarbon-technology.com](http://www.hydrocarbon-technology.com)

Si le flux thermique dégagé par la réaction de synthèse,  $\Phi_r$ , et l'écart de température entre le mélange et la paroi externe des tubes,  $\Delta T_{\text{mélange-tubes}}$ , sont constants, la surface d'échange nécessaire varie comme l'inverse du coefficient de transfert de chaleur entre le mélange et la paroi externe des tubes,  $h_M$ . Dans l'exemple ci-dessus, aux alentours de  $1\,000\text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ , une variation de seulement 10 % de la valeur du coefficient de transfert conduit à une variation d'environ 10 % du nombre de tubes nécessaires au refroidissement, ce qui peut avoir une influence non négligeable sur les coûts de construction ainsi que sur le volume disponible dans le réacteur pour le mélange réactionnel. La capacité à anticiper la valeur de ce coefficient dans les colonnes de taille industrielle est donc cruciale pour optimiser la conception de ce type de réacteur.

Or, malgré leur construction simple, les colonnes à bulles type « slurry » pour le procédé Fischer-Tropsch sont encore aujourd'hui difficiles à mettre en œuvre au niveau industriel, à cause des informations fragmentaires sur l'hydrodynamique et le transfert de chaleur sur un large domaine de conditions opératoires (Steynberg et Dry, 2004). Cela s'explique notamment par la sévérité des conditions opératoires envisagées et la complexité du comportement du mélange triphasique gaz-liquide-solide circulant dans la calandre de la colonne, qui ne cesse d'évoluer sous l'effet de la réaction de synthèse. Pour tenter de comprendre les différents mécanismes de transfert, il est nécessaire de découpler les phénomènes chimiques et physiques, de les étudier séparément, avant de tenter de les coupler pour obtenir une compréhension globale du système. C'est dans ce cadre que s'inscrit notre étude (cf. Figure I.4).

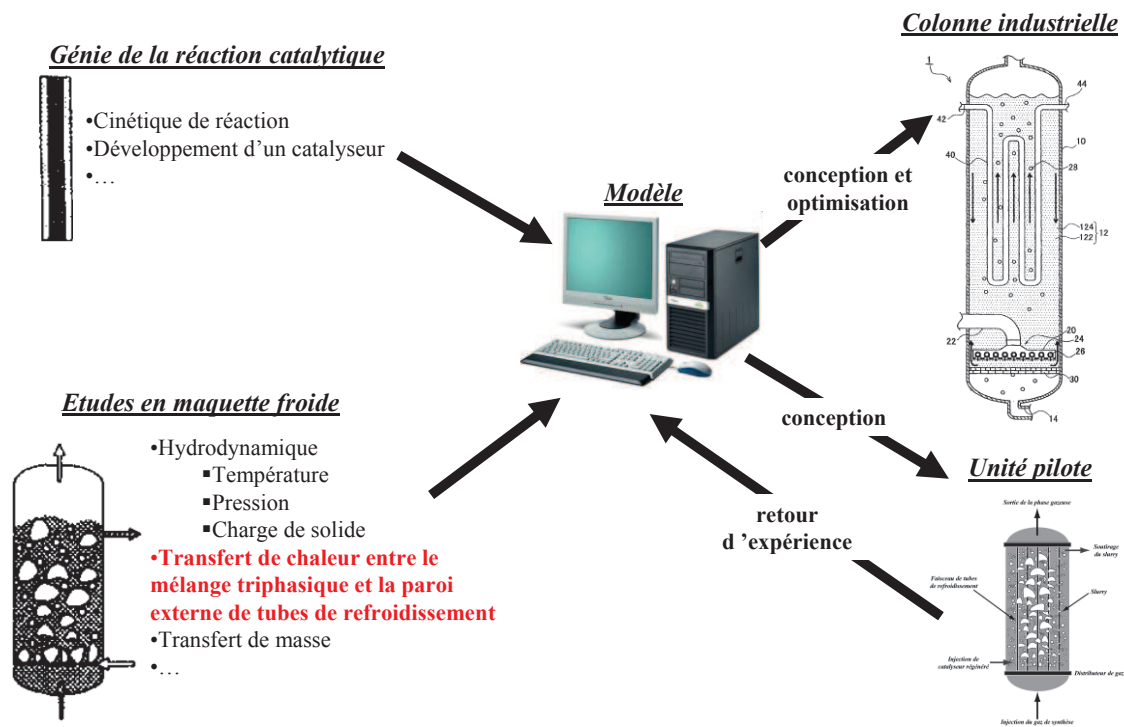


Figure I.4 Stratégie pour l'extrapolation d'une colonne à bulles type « slurry », d'après Krishna et al. (1996)©

Deux questions se posent pour l'étude du transfert thermique dans les colonnes à bulles type « slurry ». Premièrement, quelle est la fiabilité des mesures de coefficients de transfert de chaleur pour les expériences réalisées en laboratoires ? Deuxièmement, quel outil



d'extrapolation peut être utilisé pour le dimensionnement et la conception de réacteurs de taille industrielle ?

## I-4 Problématique

Une étude bibliographique, réalisée en amont de nos travaux par les équipes du Laboratoire des Composants et Systèmes Thermiques (LETh) du CEA Grenoble, a souligné l'absence de caractérisation du transfert thermique dans des colonnes à bulles type « slurry » de taille représentative (*Hulet et al., 2009*). Encore aujourd'hui, aucune étude de ce type n'a été publiée à notre connaissance. De plus, la majorité des publications reposent sur l'utilisation de sondes permettant de déterminer localement un coefficient d'échange de chaleur. Ces sondes sont constituées d'un élément chauffant (en général une résistance thermique), qui permet de maintenir à température constante un matériau bon conducteur thermique. Le flux thermique échangé entre l'élément chauffant et le mélange di- ou triphasique circulant dans la calandre est mesuré directement à l'aide de fluxmètres à gradient (*Lin et Fan, 1999*), ou est calculé à partir de la mesure de l'écart de température local entre la paroi externe de la sonde et le mélange circulant dans la calandre (*Fazeli et al., 2008*). Deux cas d'utilisation se distinguent :

- ✓ une sonde unique est insérée verticalement dans la calandre (*Deckwer et al., 1980; Lin et Fan, 1999; Abdulmohsin et al., 2010*),
- ✓ la sonde de mesure fait partie d'un faisceau de tubes verticaux, mais les autres tubes sont thermiquement inactifs (*Saxena et Vadivel, 1988; Schlüter et al., 1995*).

Le deuxième cas n'est que trop rare, alors que les faisceaux de tubes ont pourtant une influence non négligeable sur l'hydrodynamique de la colonne (*O'Dowd et al., 1987; Forret et al., 2006; Larachi et al., 2006*).

À partir de ces constatations, la mesure et la caractérisation du transfert thermique dans une colonne à bulles de taille et de géométrie jugées représentatives (typiquement 1 m de diamètre pour 5 m de hauteur, avec un faisceau de tubes en U à l'intérieur desquels circule un fluide de refroidissement) ont donc été envisagées pour améliorer la compréhension des phénomènes thermiques dans ce type de réacteur et proposer des règles de dimensionnement pour la conception de colonnes industrielles. Afin de simuler la chaleur dégagée par une réaction chimique exothermique, la phase liquide (ou le slurry) circulera en boucle fermée entre la calandre de la colonne et un échangeur de chaleur externe, relié à une chaudière électrique. Cette étude devait reposer sur deux phases :

- ✓ le développement d'une métrologie de caractérisation expérimentale du transfert de chaleur et sa validation sur une maquette analytique,
- ✓ l'implémentation de cette métrologie dans l'unité pilote de taille représentative.

Malheureusement, pour diverses raisons indépendantes de notre volonté, seule la première partie de cette étude a pu être complètement traitée durant nos travaux.

Le choix et la description de la méthode de mesure retenue, ainsi que la description de la maquette analytique sont l'objet du Chapitre II. Le Chapitre III est consacré à la validation expérimentale de la métrologie de caractérisation du transfert de chaleur dans une colonne diphasique. Enfin, la validité de la méthode retenue pour l'étude du transfert thermique dans les colonnes à bulles type slurry sera étudiée dans le Chapitre IV.





# Chapitre II : Mesure des Coefficients de Transfert de Chaleur dans les Colonnes à Bulles

## II-1 Problématique

La caractérisation thermique du système repose sur la détermination, en régime thermique permanent, d'un coefficient de transfert de chaleur entre le mélange di- ou triphasique circulant dans la calandre et la paroi externe des tubes de refroidissement. Cet objectif nécessite de déterminer quelle méthode de mesure peut être utilisée, de caractériser sa précision, et de définir comment la colonne pilote doit être instrumentée. Pour répondre à ces questions, une maquette analytique de petit diamètre a été mise au point. Cette dernière n'est en aucun cas représentative des réacteurs envisagés pour le procédé Fischer-Tropsch.

La première partie du chapitre s'intéresse à la mesure des coefficients de transfert dans les colonnes à bulles et expose la méthode de mesure choisie pour notre étude. La deuxième partie est consacrée à la description de la maquette analytique utilisée pour valider cette méthode de mesure et la métrologie associée.

## II-2 Mesure des coefficients de transfert de chaleur dans les colonnes à bulles

### II-2.1 Choix d'une méthode de mesure

Les méthodes de mesure des coefficients de transfert de chaleur dans les colonnes à bulles peuvent être soit locales (i.e. évaluation d'un coefficient de transfert en un point de la colonne), soit globales (i.e. détermination d'un coefficient moyen de transfert de chaleur pour l'ensemble de la colonne). La majorité des études publiées sur le transfert thermique dans les colonnes à bulles reposent sur l'utilisation de sondes, insérées dans la calandre, mesurant localement le flux thermique (ou la densité de flux thermique) échangé(e) à la paroi externe d'un élément chauffant inclus dans la sonde (*Hulet et al., 2009*). Les capteurs utilisés sont soit des fluxmètres à gradient (*Lin et Fan, 1999*), qui mesurent la densité de flux thermique traversant la surface sur laquelle ils sont fixés, soit des thermocouples installés à la paroi externe de l'élément chauffant (*Fazeli et al., 2008*). Le coefficient de transfert de chaleur se déduit du flux thermique (ou de la densité de flux thermique) mesuré(e) et de l'écart de température local entre la paroi externe de l'élément chauffant et le mélange de fluides circulant dans la calandre.

L'utilisation d'une telle sonde n'est pas envisageable dans le cadre de notre étude. En effet, celle-ci se focalise sur l'échange de chaleur à la paroi externe de tubes de refroidissement. Or, une sonde de mesure locale ne pourrait pas être insérée trop près de la paroi externe des tubes, afin de ne pas perturber le transfert de chaleur à l'endroit où l'on souhaite faire la mesure. En conséquence, nous n'aurions aucune garantie que le coefficient de transfert de chaleur déterminé à partir des mesures de la sonde soit le coefficient de transfert à la paroi des tubes de refroidissement. Enfin, la mesure étant locale, la sonde doit pouvoir être déplacée aussi bien axialement que radialement pour pouvoir caractériser convenablement la colonne. Un certain nombre d'auteurs ont en effet rapporté des variations de la valeur des coefficients de transfert de chaleur selon les positions axiales et radiales dans la calandre de colonnes à bulles, avec (*Saxena et al., 1990*) et sans faisceau de tubes (*Lin et Fan, 1999; Fazeli et al., 2008*). Selon la géométrie et le pas du faisceau de tubes, et les

conditions opératoires dans la colonne, le déplacement de la sonde peut être difficile. Si l'utilisation de sondes est à écarter pour notre étude, les capteurs sur lesquels leurs mesures sont basées peuvent être utilisés pour instrumenter le faisceau de tubes étudié.

Dans une étude préalable à nos travaux, l'utilisation de fluxmètres à gradient a été testée par les équipes du LETh du CEA Grenoble (*Hulet et al., 2007*). Les résultats obtenus n'ont pas été jugés satisfaisants. En effet, la pose d'un fluxmètre modifie la nature de la surface expérimentée, en introduisant une surépaisseur locale, composée de l'épaisseur du capteur et de la couche de colle nécessaire à sa fixation (de conductivité thermique connue). Cette surépaisseur se traduit par une résistance thermique supplémentaire, qui n'existe pas à l'origine sur la surface étudiée (*Thureau, 1996*). En conséquence, l'utilisation de tels capteurs nécessite un étalonnage *in situ*, après leur fixation sur la surface étudiée. Or, la colle utilisée pour fixer les fluxmètres à la paroi externe des tubes de refroidissement ne semblait pas avoir une conductivité thermique suffisamment faible pour ne pas trop modifier l'échange de chaleur. De plus, pour des raisons pratiques, aucun étalonnage des fluxmètres n'a pu être réalisé *in situ*, ce qui accentuait les probabilités d'erreur de mesure. L'utilisation de tels capteurs a donc été abandonnée.

De même, l'utilisation de thermocouples de paroi est limitée par les problèmes rencontrés lors de leur mise en place. Cette solution a été testée au cours de notre étude. Des thermocouples ont été posés par brasage à la paroi externe des tubes de refroidissement. Cependant, leur fixation s'est avérée difficilement reproductible. En particulier, les extrémités de certains thermocouples n'ont pas été correctement collées contre la paroi externe des tubes et mesurent la température du mélange diphasique à proximité de la paroi, et non la température de paroi externe (cf. Figure II.1). De plus, afin de perturber le moins possible l'échange de chaleur à la paroi, les thermocouples installés étaient de faibles diamètres (0,5 mm). Ils étaient donc fragiles et une dégradation des mesures dans le temps a pu être constatée pour plusieurs thermocouples. Leur remplacement était envisageable, mais fastidieux. Cette solution a donc été elle aussi écartée.

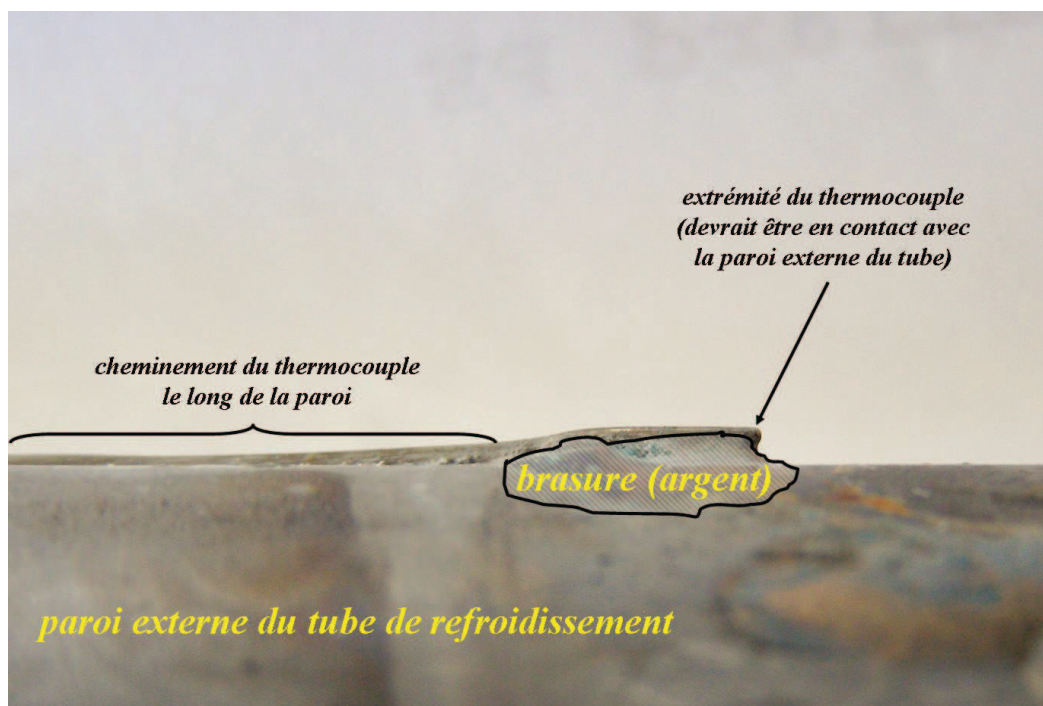


Figure II.1 Exemple de mauvaise fixation d'un thermocouple de paroi

La méthode que nous avons choisie pour déterminer un coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement repose sur l'utilisation des équations de la chaleur. Elle permet d'obtenir un coefficient de transfert pour l'ensemble de la colonne (i.e. méthode globale), à partir des seules mesures de débit, de température, et de pression, aux entrées et aux sorties du réacteur. Les calculs utilisés sont détaillés dans la suite.

## II-2.2 Méthode globale

La détermination d'un coefficient moyen de transfert de chaleur entre le mélange di- ou triphasique circulant dans la colonne et la paroi externe du système de refroidissement repose sur une méthode de calcul inverse. Les notations utilisées dans cette partie sont celles de la Figure II.2.

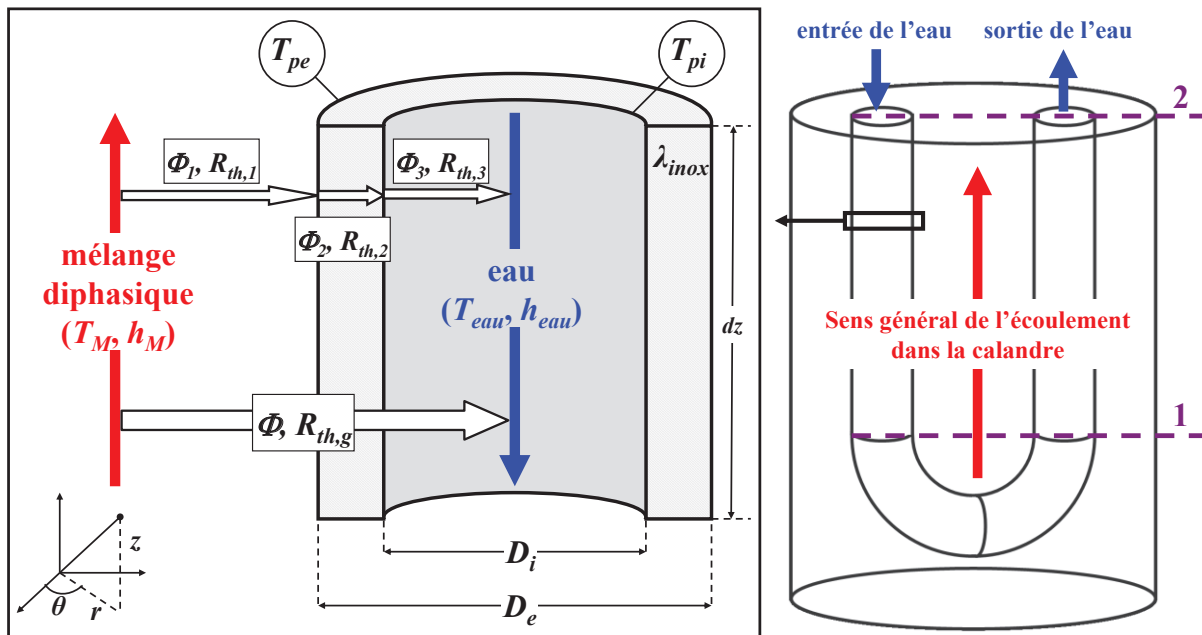


Figure II.2 Modélisation du transfert de chaleur à travers la paroi du tube de refroidissement

Afin de simplifier la présentation des calculs, le système considéré est une colonne à bulles diphasique à l'intérieur de laquelle est immergé un unique tube en U, dont la paroi est en acier inoxydable (cf. Figure II.2). Le liquide de refroidissement circulant à l'intérieur du tube est de l'eau. Le diamètre interne de la colonne, les diamètres interne et externe du tube en U sont notés  $D_c$ ,  $D_e$ , et  $D_i$ , respectivement.

### II-2.2.1 Hypothèses restrictives

Le mélange diphasique gaz-liquide est à l'équilibre liquide-vapeur : il n'y a pas de chaleur mise en jeu par un processus de vaporisation-condensation. Ce mélange diphasique est le fluide chaud de l'échangeur, et l'eau circulant à l'intérieur du tube en est le fluide froid. Comme dans la définition d'un échangeur de chaleur classique, les deux « fluides » sont séparés physiquement l'un de l'autre par une paroi étanche au transfert de matière, mais perméable au transfert d'énergie thermique. La section d'échange est constante tout au long de l'échangeur. Les zones de distribution, de séparation, et de collecte des fluides aux voisinages des entrées et des sorties de la colonne sont négligées. Dans tout ce qui suit, **la surface de référence est la paroi externe du tube en U.**

Le régime thermique permanent est supposé être établi. Toute l'enthalpie perdue par le mélange diphasique est instantanément gagnée par l'eau circulant dans le tube en U. Les pertes thermiques à travers les parois de la colonne sont négligées (échangeur adiabatique). Enfin, l'influence de la pression sur les phénomènes de transfert est négligée.

D'un point de vue hydrodynamique et thermique, les écoulements dans la calandre de la colonne et à l'intérieur du tube en U sont supposés soit parfaitement mélangés, soit pistons (i.e. il n'y a pas de profils radiaux de vitesse et de température au sein des écoulements). De plus, ils se font sans changement de phase. Par ailleurs, les propriétés physiques des fluides dans le système étudié sont considérées comme constantes. Elles sont estimées à la température moyenne de chaque fluide entre l'entrée et la sortie de l'échangeur, ce qui implique de connaître leurs variations avec la température.

Enfin, les coefficients de transfert de chaleur de chacun des fluides avec la paroi (interne ou externe) des tubes et la conductivité thermique du matériau constituant la paroi d'échange sont constants tout au long de l'échangeur.

Ces hypothèses s'appliquent aussi dans le cas de l'étude d'une colonne à bulles type slurry.

## II-2.2.2 Coefficient global de transfert de chaleur

La Figure II.2 représente de manière schématique le transfert de chaleur à travers la paroi du tube de refroidissement. Deux types d'évaluation ont été utilisés pour obtenir un coefficient global d'échange de chaleur entre le mélange circulant dans la calandre et l'eau circulant à l'intérieur du tube de refroidissement. Nous considérerons dans un premier temps que les écoulements dans les tubes et dans la calandre sont des écoulements pistons.

Le choix ayant été fait d'avoir une partie en U de dimensions relativement petites devant les longueurs droites de tube, il est envisageable de négliger l'influence de cette partie sur l'échange thermique global et de ne considérer que les deux parties droites de tube. La validité de cette hypothèse sera discutée dans le Chapitre III. Un coefficient global d'échangeur de chaleur est alors calculable pour chaque partie droite de tube si les températures d'entrée et de sortie de l'eau dans chaque partie droite de tube sont connues.

Alternativement, le tube U peut être considéré dans sa globalité. En traitant la colonne à bulles comme un échangeur de chaleur « classique » calandre-tubes à une passe dans la calandre et 2 passes dans le tube, un seul coefficient global de transfert de chaleur peut être déterminé pour le tube.

### II-2.2.2.1 Evaluation d'un coefficient par partie droite de tube

Dans un premier temps, seule la partie droite descendante du tube est considérée. Il s'agit de la partie de tube dans laquelle l'écoulement de l'eau est descendant relativement à l'axe  $z$  (en vert sur la Figure II.2). La modélisation du transfert de chaleur entre la calandre et cette partie droite de tube revient à modéliser le transfert thermique au sein d'un échangeur à contre-courant.

Pour un élément de surface  $dS_e$  de cet échangeur de chaleur, le flux thermique élémentaire  $d\Phi$  échangé entre le mélange diphasique et l'eau s'écrit :

$$d\Phi = -\dot{m}_M \cdot C_{p_M} \cdot dT_M = -\dot{m}_{eau} \cdot C_{p_{eau}} \cdot dT_{eau} \quad (\text{II-1})$$

Le flux thermique élémentaire  $d\Phi$  peut également s'exprimer de la façon suivante.

$$d\Phi = K_d \cdot dS_e \cdot (T_M - T_{eau}) \quad (\text{II-2})$$

L'équation (II-2) est la définition du coefficient global,  $K$ , caractérisant l'échange de chaleur entre le mélange diphasique circulant dans la calandre et l'eau circulant à l'intérieur du tube. L'indice «  $d$  » fait référence à la partie droite *descendante* du tube en U. En combinant les deux équations précédentes, il est possible de déduire la relation :

$$\frac{d(T_M - T_{eau})}{T_M - T_{eau}} = K_d \cdot dS_e \cdot \left( \frac{1}{\dot{m}_{eau} \cdot C_{p_{eau}}} - \frac{1}{\dot{m}_G \cdot C_{p_G} + \dot{m}_L \cdot C_{p_L}} \right) \quad (\text{II-3})$$

qui par intégration entre les points 1 et 2 (cf. Figure II.2, à droite) donne :

$$\ln \left( \frac{T_{M,2} - T_{eau,2}}{T_{M,1} - T_{eau,1}} \right) = K_d \cdot S_e \cdot \left( \frac{1}{\dot{m}_{eau} \cdot C_{p_{eau}}} - \frac{1}{\dot{m}_G \cdot C_{p_G} + \dot{m}_L \cdot C_{p_L}} \right) \quad (\text{II-4})$$

Par ailleurs, l'intégration de l'équation (II-1) entre les points 1 et 2 conduit au flux thermique total échangé par les fluides entre ces deux points.

$$\Phi = \dot{m}_M \cdot C_{p_M} \cdot (T_{M,1} - T_{M,2}) = \dot{m}_{eau} \cdot C_{p_{eau}} \cdot (T_{eau,1} - T_{eau,2}) \quad (\text{II-5})$$

La combinaison des équations (II-4) et (II-5) permet de retrouver l'expression du flux thermique total échangé entre les fluides entre les deux points en fonction du coefficient d'échange global, de la surface d'échange, et de l'écart de température moyen logarithmique, noté  $\Delta T_{ML}$ .

$$\Phi = K_d \cdot S_e \cdot \frac{(T_{M,1} - T_{eau,1}) - (T_{M,2} - T_{eau,2})}{\ln \left( \frac{T_{M,1} - T_{eau,1}}{T_{M,2} - T_{eau,2}} \right)} = K_d \cdot S_e \cdot \Delta T_{ML} \quad (\text{II-6})$$

L'écart de température moyen logarithmique permet de tenir compte du fait que l'écart de température entre les deux fluides varie le long de l'échangeur (*Incropera et de Witt, 1990*). En particulier, il permet de tenir compte du sens d'écoulement des fluides l'un par rapport à l'autre.

Le coefficient global de transfert de chaleur,  $K_d$ , peut donc être calculé en combinant les équations (II-5) et (II-6). Il est préférable de calculer le flux thermique échangé,  $\Phi$ , à partir des mesures réalisées sur l'eau circulant dans le tube. D'une part, l'écoulement est monophasique, ce qui simplifie le calcul des propriétés physiques. D'autre part, l'eau n'échange de la chaleur qu'avec le mélange circulant dans la calandre, tandis que ce dernier est potentiellement soumis à des pertes thermiques à travers la paroi de la colonne.



$$K_d = \frac{\dot{m}_{eau} \cdot Cp_{eau} \cdot (T_{eau,1} - T_{eau,2})}{S_e \cdot \Delta T_{ML}} \quad (\text{II-7})$$

En traitant de manière similaire la partie *montante* du tube (i.e. la partie droite dans laquelle l'écoulement de l'eau dans le tube est montant, relativement à l'axe  $z$ ), il est possible d'obtenir un deuxième coefficient global d'échange de chaleur, en modélisant cette fois-ci la partie droite comme un échangeur de chaleur à cocourant.

$$K_m = \frac{\dot{m}_{eau} \cdot Cp_{eau} \cdot (T_{eau,2} - T_{eau,1})}{S_e \cdot \Delta T_{ML}} \quad (\text{II-8})$$

### II-2.2.2.2 Evaluation d'un coefficient pour le tube en U

Le coefficient global d'échange entre la calandre et le tube de refroidissement, considéré dans sa globalité, s'écrit (*Incropera et de Witt, 1990*) :

$$K = \frac{\dot{m}_{eau} \cdot Cp_{eau} \cdot \Delta T_{eau}}{S_e \cdot F \cdot \Delta T_{ML}} \quad (\text{II-9})$$

$\Delta T_{eau}$  est l'écart de température de l'eau circulant entre l'entrée et la sortie du tube en U.  $F$  est le facteur correctif de l'écart de température moyen logarithmique. Il est nécessaire pour prendre en compte la circulation particulière des fluides au sein de la section d'essai. En effet, la définition de l'écart de température moyen logarithmique suppose que les fluides échangeant de la chaleur sont parallèles (à contre- ou cocourant). Cette hypothèse n'est plus valable dans le cas d'un tube en U immergé dans une calandre. Le facteur  $F$  permet alors de prendre en compte cet écart à l'idéalité. Il est compris entre 0 et 1, et se calcule à l'aide d'une expression analytique, dépendante du type d'échangeur et du mode de circulation des fluides, en fonction de deux paramètres adimensionnels,  $R$  et  $P$ , définis de la façon suivante, avec les températures d'entrée et sortie de l'eau dans le tube et du mélange di- ou triphasique dans la calandre.

$$R = \frac{T_{M,e} - T_{M,s}}{T_{eau,s} - T_{eau,e}} \quad (\text{II-10})$$

$$P = \frac{T_{eau,s} - T_{eau,e}}{T_{M,e} - T_{eau,e}} \quad (\text{II-11})$$

Dans le cas d'un échangeur à une passe de calandre et deux passes de tubes, l'équation permettant de calculer  $F$  a été donnée par *Bowman et al. (1940)*.

$$F = \frac{\frac{\sqrt{R^2 + 1}}{R - 1} \cdot \ln\left(\frac{1 - P}{1 - R \cdot P}\right)}{\ln\left(\frac{2/P - 1 - R + \sqrt{R^2 + 1}}{2/P - 1 - R - \sqrt{R^2 + 1}}\right)} \quad (\text{II-12})$$

Enfin, notons que si l'écoulement dans la calandre est parfaitement mélangé (i.e.  $T_{M,1} = T_{M,2}$ ), les équations utilisées pour le calcul de  $K_d$ ,  $K_m$ , et  $K$  s'appliquent encore.

### II-2.2.3 Coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe du tube

#### II-2.2.3.1 Evaluation d'un coefficient par partie droite de tube

Seul le cas de la partie droite descendante est considéré, les calculs pour la partie droite montante étant analogues. Le transfert de chaleur global,  $\Phi$ , entre le mélange circulant dans la calandre et l'eau circulant dans le tube, s'effectue en trois étapes (cf. Figure II.2) :

- ✓ convection entre le mélange circulant dans la calandre et la paroi externe du tube de refroidissement (flux  $\Phi_1$ ),
- ✓ conduction dans la paroi du tube de refroidissement (flux  $\Phi_2$ ),
- ✓ convection entre la paroi interne du tube et l'eau (flux  $\Phi_3$ ).

L'additivité des résistances thermiques permet d'exprimer la résistance thermique globale en fonction des résistances thermiques particulières de ces trois étapes, en utilisant la paroi externe du tube comme surface de référence (*Incropera et de Witt, 1990*).

$$\frac{1}{K_d} = \frac{1}{h_{M,d}} + \frac{D_e}{2 \cdot \lambda_{inox}} \cdot \ln\left(\frac{D_e}{D_i}\right) + \frac{D_e}{D_i \cdot h_{eau,d}} \quad (\text{II-13})$$

L'équation (II-13) traduit l'additivité des résistances de transfert côté eau de refroidissement, de paroi, et côté mélange de fluide dans la calandre. Elle peut être utilisée pour calculer le coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe de la partie droite de tube,  $h_{M,d}$ , si le coefficient de transfert de chaleur à l'intérieur du tube,  $h_{eau,d}$ , est connu. L'écoulement dans le tube en U étant monophasique, une corrélation peut être utilisée pour déterminer la valeur de  $h_{eau,d}$ . Cependant, cette dernière peut être une source d'incertitude non maîtrisée et souvent importante. Pour en limiter l'influence, il faut minimiser la résistance thermique associée au transfert de chaleur à l'intérieur du tube, ce qui revient à maximiser la valeur du coefficient de transfert de chaleur  $h_{eau,d}$ . L'écoulement de l'eau dans le tube doit donc être turbulent.

Pour les écoulement monophasiques et turbulents dans des tubes cylindriques, la corrélation de DITTUS-BOELTER est couramment utilisée pour calculer des coefficients de transfert de chaleur (*Incropera et de Witt, 1990*).

$$Nu = \frac{h_{eau,d} \cdot D_i}{\lambda_{eau,d}} = 0,0243 \cdot Re^{0,8} \cdot Pr^{0,4} \quad (\text{II-14})$$

Les propriétés physiques de l'eau utilisées dans l'équation (II-14) sont à calculer à la température moyenne de l'eau dans le tube. C'est l'un des avantages de l'utilisation de la corrélation de DITTUS-BOELTER, qui ne nécessite pas la connaissance des propriétés physiques du fluide à la température de film (i.e. proche de la paroi interne du tube), contrairement à d'autres corrélations de la littérature.

En utilisant les équations (II-7) et (II-14), la valeur du coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe du tube de refroidissement s'obtient à l'aide de l'équation suivante.

$$h_{M,d} = \left[ \frac{1}{K_d} - \frac{D_e}{2 \cdot \lambda_{inox}} \cdot \ln\left(\frac{D_e}{D_i}\right) - \frac{D_e}{D_i \cdot h_{eau,d}} \right]^{-1} \quad (II-15)$$

Pour la partie droite montante du tube en U, la valeur du coefficient de transfert,  $h_{M,m}$ , s'obtient en utilisant l'équation (II-8) à la place de l'équation (II-7), et  $K_m$  au lieu de  $K_d$ .

### II-2.2.3.2 Evaluation d'un coefficient pour le tube en U

Les équations (II-9), (II-14), et (II-15) permettent de retrouver un coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe du tube en U lorsque celui-ci est considéré dans sa globalité.

## II-2.3 Conséquence pour l'étude expérimentale

Imposer un écoulement turbulent dans le tube de refroidissement est une condition nécessaire, mais non suffisante, pour limiter l'incertitude liée à l'utilisation d'une corrélation pour calculer le coefficient de transfert de chaleur à l'intérieur du tube. Il faut de plus s'assurer que la principale résistance au transfert thermique est située dans la calandre de la colonne. Pour y parvenir, il est notamment possible de faire varier les propriétés physiques de la phase liquide circulant dans la calandre. En effet, c'est l'un des principaux paramètres dont dépend le transfert de chaleur dans les colonnes à bulles (*Deckwer, 1980*).

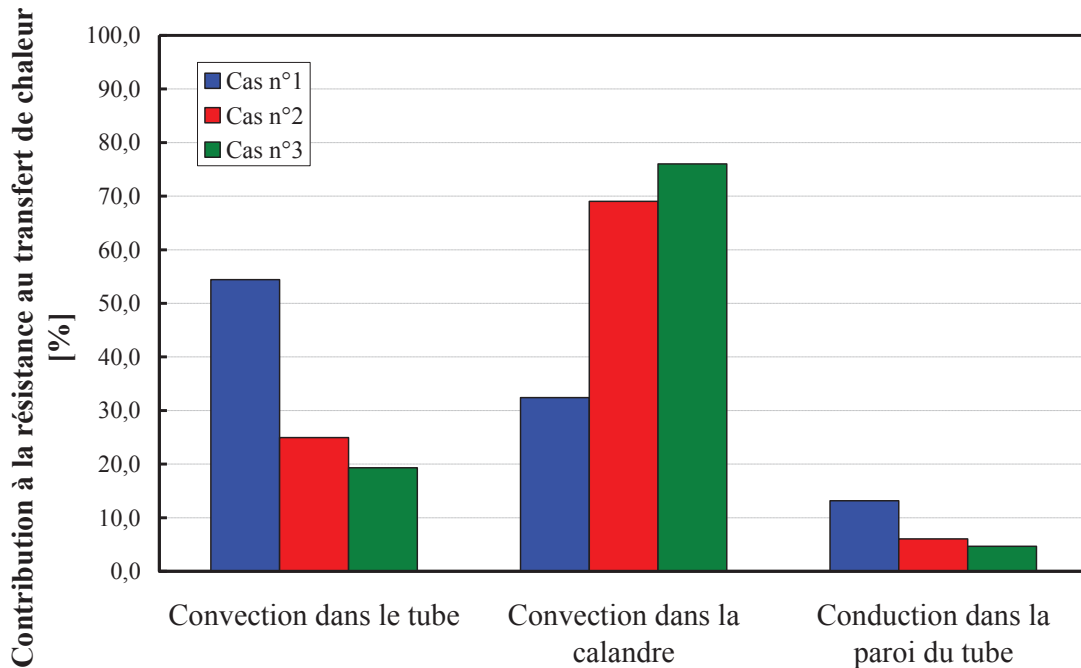
Reprenons l'exemple de la partie droite descendante d'un unique tube en U inséré dans une colonne à bulles, dans lequel circule de l'eau. Trois cas ont été analysés et leurs résultats sont comparés dans le Tableau II.1 et la Figure II.3 :

- ✓ cas n°1 (en bleu) : la phase liquide circulant dans la calandre est de l'eau ;
- ✓ cas n°2 (en rouge) : la phase liquide circulant dans la calandre a une capacité calorifique égale à la moitié de celle de l'eau ;
- ✓ cas n°3 (en vert) : la phase liquide circulant dans la calandre a une capacité calorifique égale à la moitié de celle de l'eau, et l'écart de température entre l'entrée et la sortie de la calandre est diminué de 1°C (ce qui revient à considérer un fluide ayant une conductivité thermique deux fois plus faible).

Un certain nombre d'auteurs de la littérature ont utilisé de l'eau comme fluide modèle de la phase liquide de la synthèse Fischer-Tropsch (*Schlüter et al., 1995; Wu et al., 2007*). Il serait donc intéressant d'utiliser la même phase liquide pour nos essais expérimentaux. C'est ce qui a motivé le choix du cas n°1. Malheureusement, celui-ci montre que la contribution majoritaire à la résistance de transfert est celle du côté de l'eau de refroidissement. En conséquence, la qualité de la corrélation pour estimer le coefficient de transfert de chaleur à l'intérieur va avoir un impact majeur sur l'estimation du coefficient côté calandre : une variation de -10 % de la valeur du coefficient d'échange dans le tube entraîne une variation de +22 % sur la valeur de  $h_M$ .

La diminution de la capacité calorifique du fluide circulant dans la calandre (cas n°2) entraîne une diminution de la puissance transférée à l'eau circulant dans le tube, l'écart de température entre l'entrée et la sortie de la calandre restant identique au cas n°1. La température de sortie de l'eau diminue, ce qui entraîne une augmentation de l'écart de température moyen logarithmique. La diminution de la puissance transférée à l'eau et l'augmentation du  $\Delta T_{ML}$  entraînent une diminution du coefficient global de transfert de

chaleur, donc du coefficient de transfert à la paroi externe du tube. La résistance principale au transfert de chaleur se situe alors dans la calandre, non plus dans le tube. Une variation de  $-10\%$  de la valeur de  $h_{eau}$  n'entraîne qu'une variation de  $+4\%$  de celle de  $h_M$ .



**Figure II.3** Influence des propriétés physiques de la phase liquide circulant dans la calandre sur la résistance au transfert de chaleur

**Tableau II.1** Etude de l'influence des propriétés physiques de la phase liquide du fluide circulant dans la calandre sur la résistance au transfert de chaleur

Paramètres	Cas n°1	Cas n°2	Cas n°3
Diamètre externe du tube (m)	0,025		
Diamètre interne du tube (m)	0,022		
Hauteur de la section d'essai (m)	4		
Conductivité thermique de la paroi du tube ( $W.m^{-1}.K^{-1}$ )	0,16		
Débit d'eau dans le tube ( $m^3.h^{-1}$ )	1		
Débit dans la calandre ( $m^3.h^{-1}$ )	2		
Température d'entrée de l'eau dans le tube ( $^{\circ}C$ )	10		
Température d'entrée dans la calandre ( $^{\circ}C$ )	45		
Température de sortie de la calandre ( $^{\circ}C$ )	40	40	41
Capacité calorifique du fluide dans la calandre <sup>a</sup> ( $J.kg^{-1}.K^{-1}$ )	4206	2068	2068
Température de sortie de l'eau du tube <sup>b</sup> ( $^{\circ}C$ )	19,8	14,9	13,9
Ecart de température moyen logarithmique <sup>c</sup> ( $^{\circ}C$ )	27,5	30,1	31,0
Coefficient de transfert de chaleur à l'intérieur du tube <sup>d</sup> ( $W.m^{-2}.K^{-1}$ )	2752		
Coefficient de global de transfert de chaleur <sup>e</sup> ( $W.m^{-2}.K^{-1}$ )	1318	604	468
<b>Coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe du tube <sup>f</sup> (<math>W.m^{-2}.K^{-1}</math>)</b>	<b>4067</b>	<b>875</b>	<b>616</b>

<sup>a</sup> Les propriétés physiques des fluides sont calculées selon les équations de l'Annexe C, à leurs température d'entrée dans le système.

<sup>b</sup> La température de sortie de l'eau du tube est calculée à l'aide de l'équation (II-5).

<sup>c</sup> L'écart de température moyen logarithmique est calculé pour un échange à contre-courant (cf. équation (II-6)).

<sup>d</sup> cf. équation (II-14)

<sup>e</sup> cf. équation (II-7)

<sup>f</sup> cf. équation (II-15)

La diminution de l'écart de température entre l'entrée et la sortie de la calandre (cas n°3) entraîne une diminution supplémentaire de la puissance transférée à l'eau circulant dans le tube et a donc le même effet que la diminution de la capacité calorifique du fluide. Par rapport au cas n°2, une variation de  $-10\%$  de la valeur de  $h_{eau}$  n'entraîne plus qu'une variation de  $+3\%$  de celle de  $h_M$ . Une diminution de la conductivité thermique de la phase liquide limite donc l'influence de la qualité de la corrélation utilisée pour déterminer le coefficient de transfert à l'intérieur du tube de refroidissement.

Pour l'étude expérimentale du transfert de chaleur, il faudra donc choisir un fluide ayant une capacité calorifique et une conductivité thermique plus faibles que celles de l'eau, mais ayant une densité et une viscosité similaires.

### II-3 La boucle HORTHENS

La boucle HORTHENS (Huile Eau Air THERmique EN Slurry) a été conçue comme une maquette analytique destinée à valider la métrologie choisie pour la caractérisation expérimentale du transfert de chaleur dans les colonnes à bulles type « slurry ». Elle est représentée de façon schématisée sur la Figure II.4. Elle n'est en aucun cas représentative d'une colonne à bulles industrielle, mais son fonctionnement s'inspire néanmoins du système à étudier.

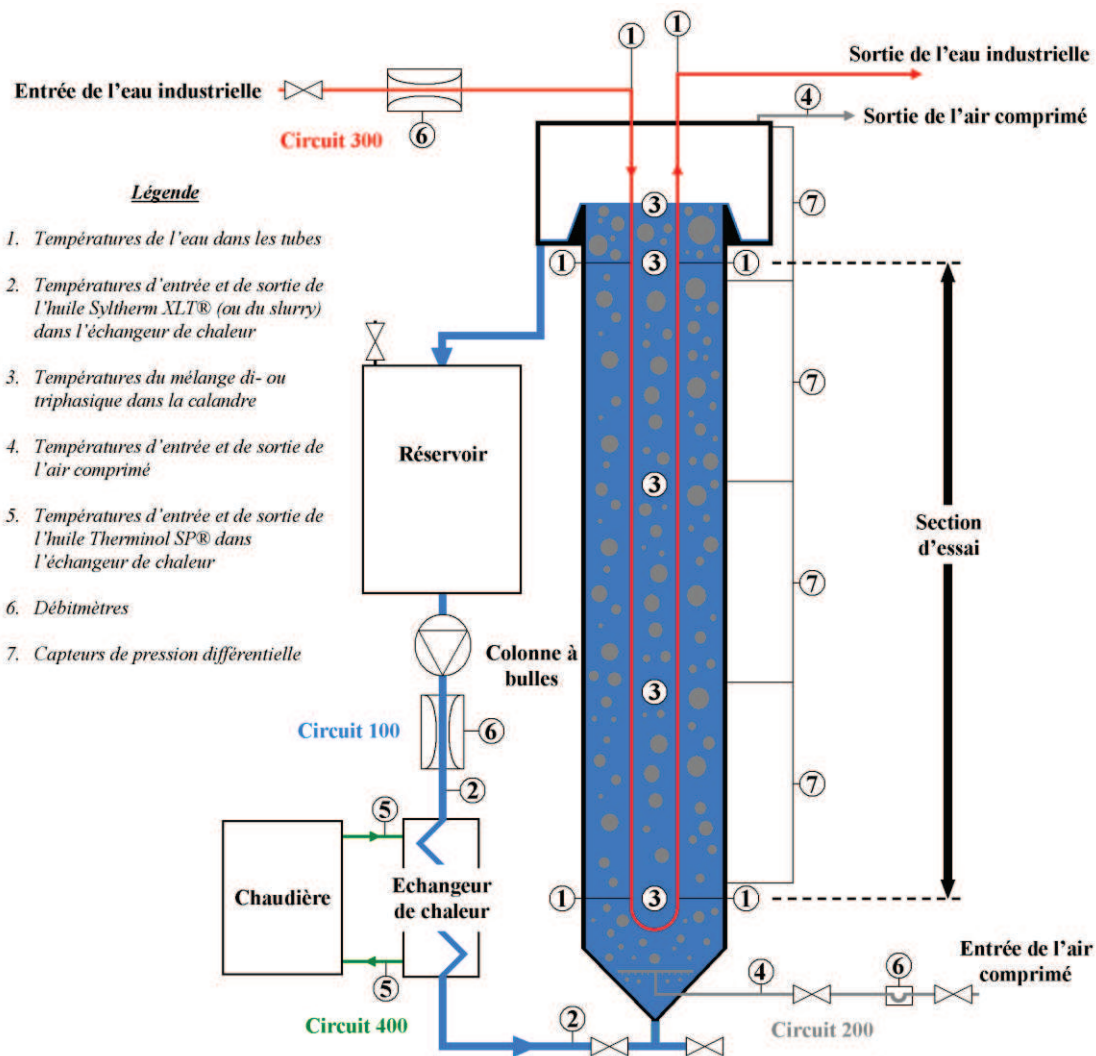


Figure II.4 Schéma général de la boucle HORTHENS

## II-3.1 Phase liquide utilisée

### II-3.1.1 Choix

Pour les essais diphasiques et en slurry, la phase liquide utilisée a été de l'huile thermique Syltherm XLT®, fabriquée par DOW CHEMICAL. C'est un fluide transparent, de viscosité et de masse volumique proche de celle de l'eau.

De plus, l'huile thermique choisie possède l'avantage d'avoir une capacité calorifique environ deux fois plus faible que celle de l'eau, ce qui permet de faire en sorte que la résistance principale au transfert de chaleur soit dans la calandre (cf. paragraphe II-2.3). Enfin, sa pression de vapeur saturante est suffisamment basse pour que les effets de vaporisation puissent être négligés lors de l'établissement des bilans thermiques. Les propriétés physiques de l'eau et de l'huile à 40°C sont comparées dans le Tableau II.2. Les variations de propriétés physiques de l'eau et de l'huile Syltherm XLT® en fonction de la température sont fournies dans l'Annexe C.

**Tableau II.2** Propriétés physiques de l'eau et l'huile Syltherm XLT® à 40°C et 1 bar

	$\rho$ (kg.m <sup>-3</sup> )	$C_p$ (J.kg <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	$\lambda$ (W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	$\mu$ (mPa.s)	$\sigma$ (mN.m <sup>-1</sup> )	$P_{sat}$ (mbar)
Eau	992	4178	0,63	0,7	70	74
Huile Syltherm XLT®	835	1814	0,11	1,0	20	6

### II-3.1.2 Conséquences pour l'hydrodynamique de la colonne

#### II-3.1.2.1 Influence de la masse volumique

La masse volumique de la phase liquide a un effet négligeable sur la rétention gazeuse. *Rados (2003)* rapporte une légère diminution de la taille des bulles avec l'augmentation de la masse volumique, mais celle-ci n'entraîne pas de variation significative de la rétention gazeuse.

#### II-3.1.2.2 Influence de la viscosité

Une augmentation de la viscosité de la phase liquide (ou du slurry) provoque une diminution de la rétention gazeuse dans la colonne (*de Swart, 1996; Li et Prakash, 1997*). *Kumar et Fan (1994)* et *Schäfer et al. (2002)* expliquent que la viscosité favorise les phénomènes de coalescence par rapport aux phénomènes de rupture, en limitant la turbulence de la phase liquide. La taille moyenne des bulles augmente, entraînant une diminution du temps de séjour de la phase gazeuse dans la colonne, donc une diminution de la rétention gazeuse. Enfin, pour les fluides très visqueux, le régime homogène disparaît complètement et le régime hétérogène prédomine mêmes aux petites vitesses superficielles de gaz (*Krishna, 2000*).

#### II-3.1.2.3 Influence de la tension superficielle

Pour les liquides purs, une tension superficielle importante favorise la formation de grosses bulles de gaz donc entraîne des valeurs de rétention gazeuse plus faible. En conséquence, la rétention gazeuse d'une colonne à bulles remplie d'eau sera plus faible que celui d'une colonne à bulles remplie d'une huile Syltherm XLT® de viscosité similaire (*Wilkinson, 1991; Krishna et Ellenberger, 1996; Rados, 2003*).

### II-3.1.2.4 Influence combinée des propriétés physiques de la phase liquide

Krishna (2000) a comparé l'évolution de la rétention gazeuse avec la vitesse superficielle du gaz (air comprimé) pour trois phases liquides différentes, dont les propriétés physiques sont données dans le Tableau II.3 (cf. Figure II.5).

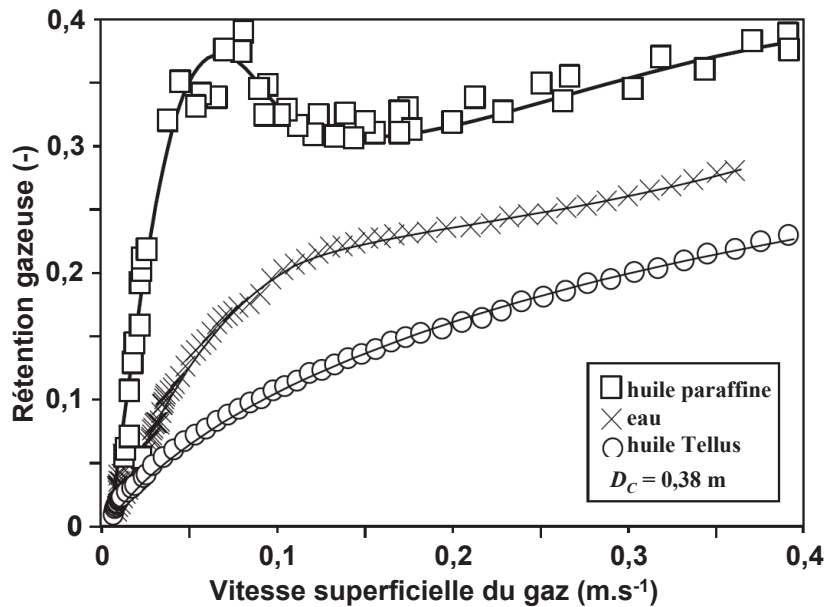


Figure II.5 Influence des propriétés physiques de la phase liquide sur la rétention gazeuse, d'après Krishna (2000)©

La masse volumique et la viscosité de l'huile de paraffine sont proches de celle de l'eau, mais la tension superficielle de l'huile de paraffine est beaucoup plus petite. Les valeurs de rétention gazeuse sont donc plus grandes pour l'huile de paraffine que pour l'eau. Au contraire, l'huile Tellus a une masse volumique et une tension superficielle proches de celles de l'huile de paraffine, mais une viscosité beaucoup plus élevée. Les valeurs de rétention gazeuse obtenues pour l'huile Tellus sont donc très inférieures aux valeurs obtenues avec l'huile de paraffine. En revanche, pour deux fluides de viscosités et de tensions superficielles différentes, comme l'huile Tellus et l'eau, l'influence combinée de la viscosité et de la tension superficielle peut donner des résultats variables. Il est donc souvent difficile de prévoir *a priori* la valeur de la rétention gazeuse pour un système gaz-liquide ou gaz-liquide-solide (Joshi et al., 1998).

Tableau II.3 Propriétés physiques à 25°C des fluides utilisés par Krishna (2000)

Phase liquide	Masse volumique (kg.m <sup>-3</sup> )	Viscosité (Pa.s)	Tension superficielle (N.m <sup>-1</sup> )
Huile de paraffine	795	0,003	0,029
Eau	998	0,001	0,072
Huile Tellus	862	0,075	0,028

### II-3.1.2.5 Conclusions

L'huile Syltherm XLT® a une tension superficielle très inférieure à celle de l'eau. Les deux fluides ayant une viscosité très proche, l'influence de la tension superficielle sera prépondérante. La rétention gazeuse dans la boucle HORTHENS sera donc plus importante que celle d'une colonne de géométrie et de dimensions similaires utilisant de l'eau comme phase liquide.

## ***II-3.2 Description générale de l'installation***

Un fonctionnement en continu de l'installation est privilégié. La boucle HORTHENS comporte quatre circuits de circulation des fluides (cf. Figure II.4) :

- ✓ le circuit 100, en bleu, assure la circulation en boucle fermée de la phase liquide (ou du slurry) entre la calandre d'une colonne à bulles et un échangeur de chaleur externe ;
- ✓ le circuit 200, en gris, permet l'injection d'air comprimé dans la calandre, le gaz circulant en système ouvert ;
- ✓ le circuit 300, en rouge, est un circuit ouvert d'eau industrielle, qui permet l'alimentation en parallèle de tubes de refroidissement en U ;
- ✓ le circuit 400, en vert, relie une chaudière d'une puissance électrique de 27 kW à l'échangeur de chaleur externe.

Les circuits 200 et 300 sont connectés aux utilités du bâtiment.

### **II-3.2.1 Circuit 100 – Colonne côté calandre**

#### ***II-3.2.1.1 Colonne***

L'élément principal du dispositif expérimental est une colonne en Plexiglas® de 3,8 m de haut et de 0,15 m de diamètre interne.

Le diamètre choisi pour la colonne correspond au diamètre critique empirique au dessus duquel la rétention gazeuse dans une colonne à bulles sans internes, fonctionnant en régime hétérogène, n'est plus affectée par le diamètre de la colonne (*Wilkinson, 1991; Joshi et al., 1998*). Or, la présence d'internes dans la colonne peut limiter la taille atteignable par les bulles de gaz. La rétention gazeuse dans une colonne avec interne est alors plus importante que dans une colonne de dimension similaire sans internes. Cet effet a été observé expérimentalement par *O'Dowd et al. (1987)*, mais n'a pas été pris en compte lors de la conception de l'installation (antérieure à nos travaux).

La hauteur de l'installation a été estimée à partir des gammes souhaitées pour les vitesses d'écoulement des fluides dans les circuits de l'installation, les températures d'entrée des fluides, et l'écart de température entre l'entrée et la sortie de l'installation pour l'eau circulant dans les tubes, en négligeant les pertes thermiques vers l'extérieur et la contribution de l'air. Le détail des calculs est présenté dans l'Annexe D.

#### ***II-3.2.1.2 Pompe***

Deux types de pompes ont été utilisés pour assurer la recirculation de la phase liquide (ou du slurry) :

- ✓ une pompe centrifuge pour les essais diphasiques,
- ✓ une pompe volumétrique à piston rotatif pour les essais en slurry.

La pompe centrifuge est une pompe en inox SOMEFLU® (modèle HMI-H, type 32/300). Cette pompe ne dispose pas de variateur. La régulation du débit se faisait donc manuellement par l'intermédiaire du degré d'ouverture d'une vanne de réglage placée en aval de la pompe et en amont de la colonne, après l'échangeur de chaleur (cf. Figure II.4). Cette pompe n'a pas pu être employée pour les essais en slurry en raison de l'utilisation de particules d'alumine abrasives.



La pompe à piston rotatif choisie pour la remplacer est de marque MOUVEX (modèle AM-O). Elle a été capable de fonctionner avec des concentrations en solide importantes (jusqu'à 20 % massique). Contrairement à la première pompe, elle est équipée d'un variateur qui permet la régulation du débit. La vanne de réglage initialement installée a donc été supprimée.

### ***II-3.2.1.3 Echangeur de chaleur externe***

L'échangeur de chaleur externe, qui permet de simuler la chaleur dégagée par une réaction exothermique, est placé entre l'aval de la pompe et l'amont de la colonne. Il sert à contrôler la température d'entrée de la phase liquide (ou du slurry) dans la colonne. Il est relié à la chaudière de 27 kW par le circuit 400, qui est rempli d'huile thermique Therminol SP® circulant à débit constant. Deux types d'échangeurs ont été utilisés :

- ✓ un échangeur à plaques brasées type EXEL® (prototype de l'entreprise CIAT), pour les essais diphasiques,
- ✓ un échangeur coaxial cintré (dimensionné et réalisé au CEA Grenoble, cf. Annexe E), pour les essais triphasiques.

Dans les deux cas, les différentes parties de l'échangeur sont en acier inoxydable.

Un échangeur à plaques est un échangeur de chaleur dont la surface d'échange est grande par rapport à son volume. Son encombrement est donc limité, ce qui a motivé son utilisation lors du montage de la boucle HORTHENS. Cependant, le faible diamètre hydraulique des canaux définis par les plaques a fait craindre des problèmes de bouchage lors de l'utilisation de slurries dans l'installation. Un échangeur coaxial cintré a donc été choisi comme alternative : le mélange huile Syltherm XLT®-particules d'alumine circule dans le tube central, à contre-courant avec l'huile Therminol SP®, qui circule dans l'espace annulaire entre les deux tubes.

### ***II-3.2.1.4 Réservoir tampon***

Le réservoir tampon est placé entre la tête de colonne et l'entrée de la pompe. Il a deux rôles essentiels :

- ✓ assurer la charge de la pompe de recirculation,
- ✓ absorber les variations de niveau d'huile dans la calandre de la colonne, liées aux variations de la rétention gazeuse dans la colonne avec la vitesse superficielle du gaz.

Le volume libre disponible (i.e. volume de la colonne, moins le volume occupé par les tubes de refroidissement) est d'environ 60 L. La vitesse superficielle de gaz maximale envisagée dans l'installation est  $0,3 \text{ m.s}^{-1}$ . En supposant des valeurs de rétention gazeuse pour l'huile Syltherm XLT® du même ordre de grandeur que celle de l'huile paraffine utilisée par Krishna (2000) (cf. Figure II.5), la rétention gazeuse dans la colonne de la boucle HORTHENS ne devrait pas dépasser 50 %. Le volume du réservoir a donc été fixé à 35 L, afin de lui permettre de remplir son double rôle.

### **II-3.2.2 Circuit 200 – Gaz**

Le gaz circulant dans le circuit 200 est de l'air comprimé, qui est réchauffé à l'aide d'un cordon chauffant électrique avant son injection dans la colonne, de manière à être en équilibre thermique avec l'huile Syltherm XLT® (ou le slurry) entrant dans la calandre. Le distributeur de gaz est un distributeur en croix, centré sur l'axe de la colonne et comprenant

51 trous de 0,7 et 1 mm de diamètre orientés vers le bas. Il est fixé dans le fond conique à 0,19 m sous les tubes de refroidissement. Le diamètre choisi pour les trous du distributeur doit permettre l'apparition du régime homogène dans la colonne. En effet, plusieurs auteurs, dont *Wilkinson et al. (1992)*, ont rapporté un diamètre critique empirique, compris en général entre 1,5 et 2 mm, pour les trous d'injection du gaz au-dessus duquel le régime homogène disparaît.

L'influence du distributeur de gaz sur l'hydrodynamique de la colonne reste limitée au régime homogène, pour lequel les phénomènes de coalescence sont limités. La distribution de tailles des bulles dans la colonne est alors proche de la distribution de tailles initiale, fixée par le distributeur de gaz. Cependant, compte-tenu du rapport d'aspect de la colonne ( $H_c/D_c = 26 \gg 5$ ), cette influence disparaît en régime hétérogène, pour lequel la distribution de tailles des bulles est uniquement le résultat de l'équilibre entre les phénomènes de rupture et de coalescence des bulles (*Patel et al., 1990; Luo et al., 1999*).

L'air comprimé sortant de la colonne est extrait en tête de colonne au moyen d'une zone de séparation gaz-liquide. Cette dernière est constituée d'une zone annulaire de 0,3 m de diamètre, qui permet de diviser par cinq les vitesses superficielles du gaz et de la phase liquide, par rapport aux conditions d'entrée. L'air s'échappe ensuite par quatre orifices, percés dans la bride de maintien des tubes de refroidissement. Cependant, lors de la conception de la boucle, antérieure à nos travaux, ces derniers ont été sous-dimensionnés. En conséquence, une partie du gaz est entraîné avec la phase liquide (ou le slurry) vers le réservoir permettant d'assurer la charge la pompe. Afin d'éviter toute surpression dans le système, le ciel du réservoir est mis directement à l'atmosphère et participe au processus de désengagement.

### II-3.2.3 Circuit 300 – Liquide de refroidissement

Deux tubes de refroidissement en U en acier inoxydable, de 26,7 mm de diamètre externe et de 2,2 mm d'épaisseur, sont suspendus verticalement au centre de la colonne à l'aide d'une bride en acier inoxydable. Ils sont dans des plans perpendiculaires l'un par rapport à l'autre, mimant un motif élémentaire d'un échangeur à pas carré de 60 mm (soit environ deux diamètres externes de tube). Les deux tubes se croisent en pied de colonne, le tube le plus long passant sous le tube le plus court. Dans la suite du manuscrit, les termes de « tube long » et « tube court » seront employés pour distinguer les deux tubes en U. Ces derniers sont maintenus solidaires par une soudure au niveau des retournements.

La régulation du débit d'eau industrielle circulant en système ouvert dans les tubes se fait manuellement à l'aide du degré d'ouverture de deux vannes de réglage, installées en série, de telle sorte que l'écoulement dans les tubes soit turbulent ( $Re > 10^4$ ). L'alimentation des deux tubes en U se fait par division du débit global au moyen d'un té réducteur. Cette division n'est pas tout à fait à part égales à cause de la différence de longueur, donc de pertes de charge, entre les deux tubes. De fait, le débit dans le « tube long » est plus faible que celui du « tube court » d'environ 20 %.

### II-3.3 Conditions opératoires

L'étude de l'influence de la pression sur le transfert de chaleur n'est pas l'objet de cette installation. La tête de colonne est donc à la pression atmosphérique. De plus, les températures d'entrée du gaz et de la phase liquide (ou du slurry) dans la colonne sont limitées à 50°C. En effet, la colonne a été construite en Plexiglas® (polyméthacrylate de méthyle) de manière à permettre une visualisation de l'écoulement dans la calandre. Cependant, La transition vitreuse du polymère est aux alentours de 50°C. En moyenne, la

température dans la colonne au cours des essais a donc toujours été comprise entre 40 et 45°C.

La température d'entrée de l'eau dans le système n'est pas régulée. Elle est dépendante de la température du réseau, elle-même dépendante de la température de la nappe phréatique. En conséquence, elle varie avec les saisons entre 8 et 14°C, environ. *A priori*, cela n'a pas d'incidence directe sur la détermination des coefficients de transfert de chaleur, puisque celle-ci repose sur des écarts de température.

La variable opératoire principale de l'étude d'une colonne à bulles est la vitesse superficielle du gaz. Elle doit varier de manière à pouvoir étudier les régimes hydrodynamiques homogène et hétérogène. Le régime homogène se développe pour des vitesses superficielles de gaz en général inférieures à 0,05 m.s<sup>-1</sup> (*de Swart, 1996*). Le régime hétérogène est en général atteint pour des vitesses superficielles de gaz supérieures à 0,1 m.s<sup>-1</sup> (*Krishna et Ellenberger, 1996*). Une vitesse superficielle maximale a été fixée à 0,3 m.s<sup>-1</sup>.

Le débit d'huile Syltherm XLT® étant initialement dépendant de la pompe centrifuge, qui ne dispose pas de variateur, la vitesse superficielle du fluide a été fixée à 0,08 m.s<sup>-1</sup>. Cette vitesse correspond au débit obtenu au degré d'ouverture minimale de la vanne de régulation manuelle, soit environ 4,3 m<sup>3</sup>.h<sup>-1</sup> en entrée de colonne. Afin de pouvoir comparer les essais entre eux, la même vitesse a été conservée lors des essais triphasiques. Cette vitesse est nettement supérieure aux vitesses de liquide envisagées dans la calandre pour le procédé Fischer-Tropsch, qui est d'environ 0,01 m.s<sup>-1</sup> dans les colonnes à bulles type slurry de type industrielle (*Sehabiague et al., 2008*). L'influence de la vitesse superficielle de la phase liquide sur l'hydrodynamique des colonnes à bulles semble limitée, bien qu'elle ait été très peu étudiée (*Akita et Yoshida, 1973; de Swart, 1996; Mitra-Majumdar et al., 1998*). Cependant, une augmentation de la vitesse superficielle de la phase liquide au-delà de 0,06 m.s<sup>-1</sup> favorise le transfert de chaleur dans les colonnes à bulles diphasiques, pour les fluides de faible viscosité telle que l'eau (*Kumar et Fan, 1994*). La valeur des coefficients de transfert de chaleur mesurés dans la boucle HORTHENS sera donc probablement supérieure à celle qui aurait été obtenue avec une vitesse superficielle d'huile Syltherm XLT® (ou de slurry) de 0,01 m.s<sup>-1</sup>.

Pour l'ensemble des essais, afin de maximiser les écarts de température et assurer un écoulement turbulent dans les tubes en U, la vitesse d'écoulement de l'eau a été fixée à 0,7 m.s<sup>-1</sup>, ce qui correspond à un débit d'alimentation globale de 2 m<sup>3</sup>.h<sup>-1</sup>. Ce choix permet d'atteindre des écarts de température de 8 à 10°C entre l'entrée et la sortie des tubes en régime hétérogène (selon la température d'entrée de l'eau dans les tubes).

### ***II-3.4 Instrumentation***

La boucle HORTHENS est instrumentée à l'aide de vingt-trois thermocouples, de cinq débitmètres répartis sur les différents circuits, de trois capteurs de pression absolue et de quatre capteurs de pression différentielle. Les gammes d'utilisation et les incertitudes d'étalonnage des différents capteurs ont été regroupées dans le Tableau II.4.

#### **II-3.4.1 Acquisition des données**

L'ensemble des capteurs de la boucle HORTHENS est connecté à une centrale d'acquisition AGILENT®, type HP 34970A. Cette dernière est équipée de trois cartes d'acquisition multiplexeur HP 34901A (22 voies chacune). Ces cartes permettent des mesures

en tension (20 voies) et des mesures en courant (2 voies), avec des capteurs deux fils. Les thermocouples sont directement reliés aux voies en tension des multiplexeurs. Les appareils de mesure dont le signal de sortie est un courant électrique entre 4 et 20 mA sont directement connectés aux voies en courant, quand c'est possible. Si toutes les voies en courant sont toutes occupées, les appareils sont connectés aux voies en tension, et une résistance électrique est ajoutée en parallèle à la connexion pour transformer le signal courant en signal tension.

Le temps pour effectuer une lecture complète des voies est un paramètre réglable de la centrale d'acquisition. Une période d'échantillonnage de sept secondes (soit une fréquence de 0,14 Hz) a été choisie pour l'acquisition et l'enregistrement de l'ensemble des essais présentés dans les Chapitres III et IV. Elle correspond à la période d'échantillonnage minimum pour effectuer la scrutation de l'ensemble des voies de mesure.

### II-3.4.2 Mesures de températures

Pour plus d'informations sur les différents types de thermocouples existants et leurs principales caractéristiques, le lecteur est invité à consulter les articles de *Bonnier et Devin (1997)* ou *Childs et al. (2000)*. Tous les thermocouples installés sont de *type J* (fer/nickel-cuivre). Ils ont une sensibilité moyenne de  $55 \mu\text{V} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$ .

#### II-3.4.2.1 Fluide côté calandre

Sept thermocouples de 1,5 mm de diamètre instrumentent le circuit de recirculation de l'huile. Deux thermocouples sont placés aux bornes de l'échangeur de chaleur régulant la température d'entrée de l'huile (ou du slurry) dans la colonne (cf. Figure II.4). Ils permettent notamment de vérifier l'efficacité de l'échange de chaleur. Les cinq autres thermocouples sont placés à différentes élévations le long de la colonne et permettent de mesurer la température du mélange di- ou triphasique circulant dans la calandre de la colonne (cf. thermocouples G sur la Figure II.6). Ils peuvent tous coulisser sur un diamètre de la colonne de manière à réaliser des profils radiaux de température, à l'exception du thermocouple situé à 3,37 m. Ce dernier est placé dans le déversement d'huile résultant du désengagement gazeux en tête de colonne.

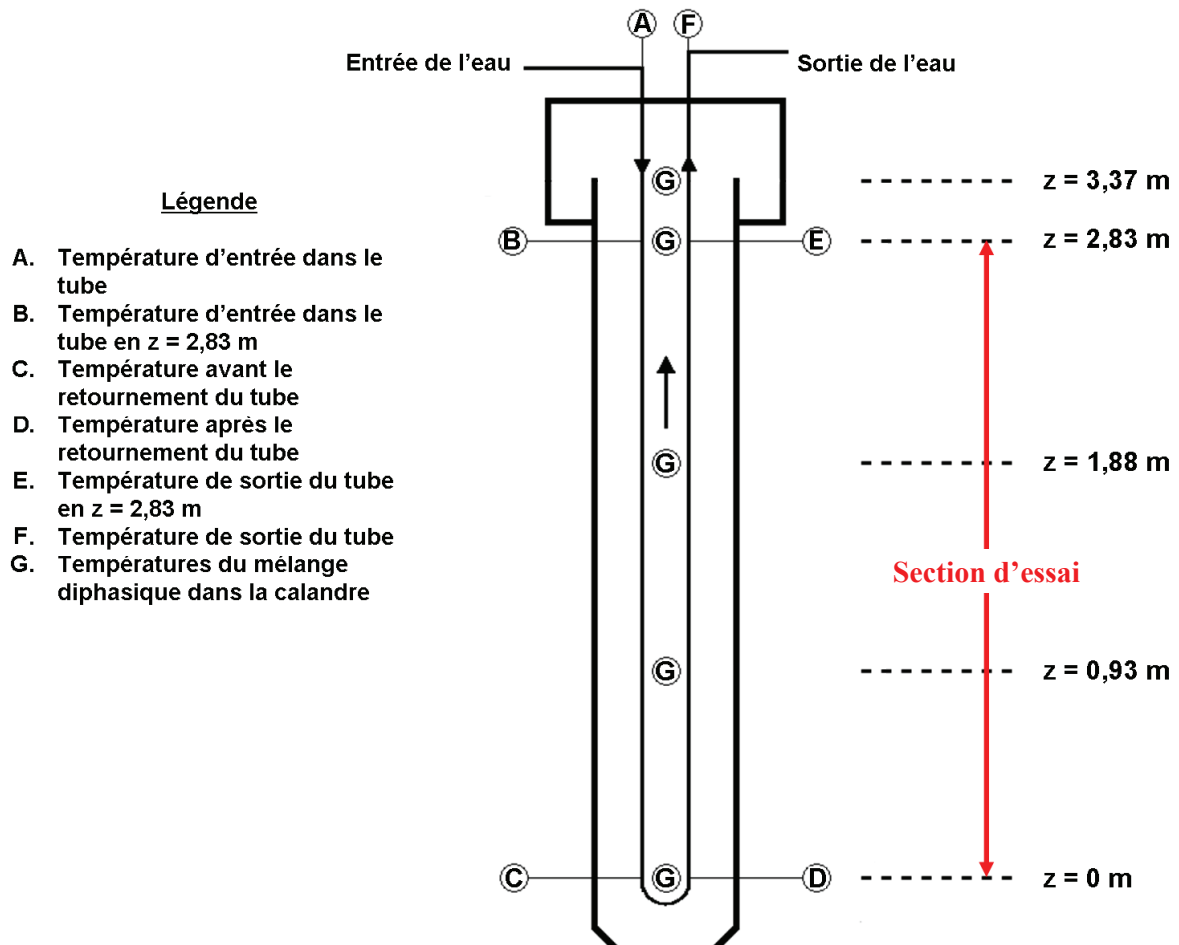
#### II-3.4.2.2 Gaz

Deux thermocouples de 1,5 mm de diamètre instrumentent le circuit de circulation du gaz. Le premier, placé avant l'injection du gaz dans la colonne (en dehors de la section d'essai), enregistre la température d'entrée de l'air dans la colonne. Le second est placé dans le ciel de la zone de désengagement pour mesurer la température de l'air sortant du système.

Seule la valeur mesurée par le premier thermocouple est exploitée lors du dépouillement des essais. Elle permet de corriger le débit volumique d'air comprimé entrant dans le système, qui est mesuré en normaux mètres cubes par heure ( $\text{Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ ).

#### II-3.4.2.3 Eau de refroidissement

La Figure II.6 récapitule les positions de thermocouples sur les deux tubes en U. Les thermocouples A et F font 1,5 mm de diamètre. Ils sont situés au-dessus de la bride de suspensions de tubes en U. Ils permettent de contrôler les températures d'entrée et de sortie de l'eau dans l'installation. Ces thermocouples ne sont pas utilisés dans le dépouillement des essais.



**Figure II.6** Mesures de température dans la section d'essai

La détermination des coefficients de transfert repose sur les thermocouples B, C, D, et E. Ces thermocouples font 1 mm de diamètre et définissent une section d'essai de 2,83 m de haut. Ils permettent de ne considérer que les deux parties droites des tubes en U pour le calcul des coefficients  $K_d$  et  $K_m$  (cf. équations (II-7) et (II-8)). Le calcul du coefficient  $K$  ne fait intervenir que les mesures des thermocouples B et E (cf. équation (II-9)).

Cependant, les thermocouples D n'ont pas été étalonnés avant leur installation sur le faisceau de tubes. De plus, en l'absence d'échange thermique, ces derniers mesureraient des températures en général inférieures de  $0,3^\circ\text{C}$  par rapport aux températures mesurées par les thermocouples C et par le thermocouple mesurant la température de l'huile dans la calandre à la même altitude (cf. Figure II.6), qui ont tous été préalablement étalonnés. En conséquence, lors du dépouillement des essais, une correction de  $0,3^\circ\text{C}$  a été systématiquement appliquée aux mesures des thermocouples D. De plus, les thermocouples C et D permettent de quantifier l'échange thermique au niveau du retournement des tubes. Cet aspect sera discuté ultérieurement dans le Chapitre III.

Enfin, le débit dans le tube « long » étant légèrement inférieur au débit dans le tube « court » (environ 20 %), les températures de l'eau dans le tube « long » sont systématiquement inférieures à celles du tube « court » (à l'exception des températures mesurées par les thermocouples A, qui sont égales à la température du réseau d'eau du bâtiment).

### II-3.4.3 Mesures de débit

#### II-3.4.3.1 Débitmètre massique à effet Coriolis

Le débitmètre massique à effet Coriolis permet de mesurer le débit d'huile Syltherm XLT® entrant dans la colonne. Il est composé d'un capteur (type R100s) et d'un transmetteur intégré (type 1700I), de marque MICRO MOTION. Il présente l'avantage de pouvoir fonctionner quelle que soit la concentration en solide dans l'écoulement. Cela a permis de conserver le même appareil de mesure pour les essais diphasiques et triphasiques. De plus, ce débitmètre affiche la valeur instantanée de la densité du fluide (ou du mélange liquide-solide) traversant l'appareil. Cette valeur ne peut pas être enregistrée par le système d'acquisition, contrairement à la valeur du débit.

#### II-3.4.3.2 Débitmètre massique à effet thermique

Le débit d'air comprimé entrant dans la colonne est mesuré par un débitmètre massique à effet thermique BROOKS (type 5853E). Ce dernier est couplé à un régulateur analogique, qui contrôle le degré d'ouverture de la vanne de régulation intégrée au débitmètre. L'ensemble débitmètre/régulateur est connecté à un convertisseur analogique, fabriqué par SERV' INSTRUMENTATION, qui permet de fixer directement un débit volumique de gaz en normaux mètres cubes par heure ( $\text{Nm}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ ). L'acquisition du signal analogique du débitmètre se fait directement au niveau du convertisseur par recopie du signal envoyé au débitmètre.

#### II-3.4.3.3 Débitmètres électromagnétiques

Un débitmètre électromagnétique ROSEMOUNT (type 8711, avec un transmetteur type 8722) mesure le débit volumique global d'alimentation des tubes de refroidissement en amont de la boucle d'essai. Le débit entrant dans chaque tube est mesuré par :

- ✓ un débitmètre électromagnétique ROSEMOUNT (type 8711), pour le tube « long »,
- ✓ un débitmètre électromagnétique ENDRESS & HAUSER (type Promag), pour le tube « court ».

La somme des débits entrant dans les tubes est inférieure de  $0,03 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  par rapport au débit global d'alimentation en eau industrielle de l'installation (1,3 % du débit global).

#### II-3.4.3.4 Débit d'huile sortant de la chaudière

Le débit d'huile sortant de la chaudière électrique est constant. Pour cette raison, aucun débitmètre n'a été installé entre la chaudière et l'échangeur de chaleur externe. Le débit est fonction du type d'échangeur de chaleur utilisé, l'échangeur à plaques générant plus de pertes de charge que l'espace annulaire de l'échangeur coaxial cintré. Il a été estimé dans les deux cas en établissant un bilan d'énergie aux frontières de l'échangeur de chaleur, en négligeant les pertes thermiques. Lorsque l'échangeur à plaques est utilisé, le débit d'huile Therminol SP® est d'environ  $3,8 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ . Avec l'échangeur coaxial cintré, il est d'environ  $3,7 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ .

### II-3.4.4 Mesures de pression

Les mesures de pression mises en place sur la boucle HORTHEMS sont de deux sortes :

- ✓ mesures de pression absolue sur les circuits d'huile Syltherm XLT®, d'air, et d'huile Therminol SP®,
- ✓ mesures de pression différentielle entre différentes sections de la colonne.

Les mesures de pression absolue servent avant tout à vérifier la circulation des fluides dans les circuits. Les mesures de pression différentielle permettent de caractériser le comportement hydrodynamique de la colonne à bulles en fonction des conditions opératoires.

#### **II-3.4.4.1 Capteurs de pression absolue**

Un capteur de pression absolue est placé en pied de colonne, à l'altitude de référence de la section d'essai (i.e.  $z = 0$  m) (cf. Figure II.6). Il s'agit d'un capteur DANFOSS, type AKS 33.

Le capteur de pression absolue du circuit d'air comprimé est placé en amont du distributeur de gaz, après le cordon chauffant permettant la mise en température de l'air comprimé. Il s'agit d'un capteur KELLER, type PAA-21S-10. Il permet de corriger le débit d'air, mesuré en normaux mètres cubes par heure, afin d'obtenir le débit volumique d'air dans les conditions d'entrée dans la colonne.

Enfin, un capteur de pression absolue est placé sur la canalisation sortant de la chaudière en direction de l'échangeur de chaleur. Il s'agit d'un capteur DANFOSS, type MBS 33.

#### **II-3.4.4.2 Capteurs de pression différentielle**

Quatre capteurs de pression différentielle sont positionnés le long de la colonne de la boucle HORTHENS. Ils sont connectés à des prises de pressions réparties symétriquement sur la circonférence de la colonne (quatre prises par altitude). Ils mesurent la pression différentielle dans les sections suivantes (cf. Figure II.6) :

- ✓ entre  $z = 0$  m et  $z = 0,93$  m (capteur ROSEMOUNT, type 3051CD2),
- ✓ entre  $z = 0,93$  m et  $z = 1,88$  m (capteur ROSEMOUNT, type 3051CD2),
- ✓ entre  $z = 1,88$  m et  $z = 2,83$  m (capteur SCHLUMBERGER, type 8D),
- ✓ entre  $z = 2,83$  m et le ciel de la zone de désengagement (capteur ROSEMOUNT, type 3051CD1).

Les mesures des capteurs de pression différentielle permettent d'obtenir la rétention gazeuse globale dans chaque section de la colonne. La détermination de la rétention gazeuse par mesure de pression différentielle est une méthode non intrusive, couramment utilisée pour déterminer la rétention gazeuse, en particulier dans des colonnes dont les parois ne sont pas transparentes (*Boyer et al., 2002*). La différence de pression statique sur une hauteur de  $H$  de lit s'écrit :

$$\Delta P_a = (\rho_G \varepsilon_G + \rho_L \varepsilon_L) \cdot g \cdot H \quad \text{(II-16)}$$

Les tubes reliant les capteurs de pression différentielle entre eux sont remplis de liquide, ainsi que ceux les connectant aux prises de pression. La différence de pression statique à l'intérieur de ces tubes s'exprime donc la façon suivante.

$$\Delta P_b = \rho_L \cdot g \cdot H \quad \text{(II-17)}$$

Les capteurs de pression différentielle mesurent la différence,  $\Delta(\Delta P)$ , entre  $\Delta P_a$  et  $\Delta P_b$ . En négligeant  $\rho_G$  devant  $\rho_L$ , la rétention gazeuse globale sur la hauteur H s'exprime alors :

$$\varepsilon_G = \frac{\Delta(\Delta P)}{\rho_L \cdot g \cdot H} \quad \text{(II-18)}$$

Cette méthode a été choisie, car elle permet la détermination de la rétention gazeuse de manière non intrusive.

### II-3.4.5 Récapitulatif

Le Tableau II.4 récapitule, pour chaque circuit, les instruments de mesures disponibles avec leur gamme d'utilisation et leur incertitude d'étalonnage. Les lettres des thermocouples du circuit 300 (i.e. eau de refroidissement) font référence à la Figure II.6. Les thermocouples D n'ayant pas été étalonnés, leur incertitude d'étalonnage est prise comme étant égale à 0,1°C après comparaison, en l'absence d'échange thermique, avec les thermocouples situés à la même altitude, qui ont eux été étalonnés.



**Tableau II.4** *Gammes d'utilisation et incertitudes d'étalonnage des capteurs de la boucle HORTHEMS*

Circuit	Capteur	Gamme d'utilisation	Incertitude d'étalonnage
<i>Mesures de température</i>			
100	Température d'entrée de l'échangeur externe	20-60°C	±0,07°C
100	Température de sortie de l'échangeur externe	20-60°C	±0,10°C
100	Température dans la calandre en $z = 0$ m	20-60°C	±0,06°C
100	Température dans la calandre en $z = 0,93$ m	20-60°C	±0,06°C
100	Température dans la calandre en $z = 1,88$ m	20-60°C	±0,06°C
100	Température dans la calandre en $z = 2,83$ m	20-60°C	±0,06°C
100	Température dans la calandre en $z = 3,37$ m	20-60°C	±0,07°C
200	Température d'entrée de l'air comprimé	20-60°C	±0,07°C
200	Température de sortie de l'air comprimé	20-60°C	±0,08°C
300	Tube « long », thermocouple A	10-30°C	±0,09°C
300	Tube « long », thermocouple B	10-30°C	±0,04°C
300	Tube « long », thermocouple C	10-30°C	±0,12°C
300	Tube « long », thermocouple D	10-30°C	±0,10°C
300	Tube « long », thermocouple E	10-30°C	±0,10°C
300	Tube « long », thermocouple F	10-30°C	±0,10°C
300	Tube « court », thermocouple A	10-30°C	±0,10°C
300	Tube « court », thermocouple B	10-30°C	±0,11°C
300	Tube « court », thermocouple C	10-30°C	±0,12°C
300	Tube « court », thermocouple D	10-30°C	±0,10°C
300	Tube « court », thermocouple E	10-30°C	±0,07°C
300	Tube « court », thermocouple F	10-30°C	±0,11°C
400	Température d'entrée dans l'échangeur externe	50-110°C	±0,05°C
400	Température de sortie de l'échangeur externe	40-60°C	±0,05°C
<i>Mesures de débit</i>			
100	Débitmètre massique à effet Coriolis	0-12 000 kg.h <sup>-1</sup>	±3,97 kg.h <sup>-1</sup>
200	Débitmètre massique à effet thermique	0-60 m <sup>3</sup> .h <sup>-1</sup>	±0,13 m <sup>3</sup> .h <sup>-1</sup>
300	Débitmètre volumique (alimentation générale)	0-6,8 m <sup>3</sup> .h <sup>-1</sup>	±0,01 m <sup>3</sup> .h <sup>-1</sup>
300	Débitmètre volumique (tube « long »)	0-6 m <sup>3</sup> .h <sup>-1</sup>	±0,002 m <sup>3</sup> .h <sup>-1</sup>
300	Débitmètre volumique (tube « court »)	0-6,6 m <sup>3</sup> .h <sup>-1</sup>	±0,01 m <sup>3</sup> .h <sup>-1</sup>
<i>Mesures de pression</i>			
100	Pression absolue en entrée de colonne	-1-6 bar	±0,008 bar
200	Pression absolue d'air comprimé en entrée de colonne	0,05-10 bar	±0,007 bar
400	Pression absolue en sortie de chaudière	0,1-4 bar	±0,002 bar
100	Pression différentielle entre 0 et 0,93 m	0-620 mbar	±0,29 mbar
100	Pression différentielle entre 0,93 et 1,88 m	10-200 mbar	±0,09 mbar
100	Pression différentielle entre 1,88 et 2,83 m	10-75 mbar	±0,08 mbar
100	Pression différentielle entre 2,83 m et le ciel de la zone de désengagement	0-62 mbar	±0,03 mbar





## Chapitre III : Validation Expérimentale de la Métrologie

### III-1 Introduction

La validation expérimentale de la métrologie de mesure des coefficients de transfert de chaleur mise en place sur la boucle HORTHENS repose sur l'utilisation du couple diphasique air-huile Syltherm XLT®, dont le choix a été justifié dans le Chapitre II. L'hydrodynamique et les transferts thermiques dans les colonnes à bulles dépendant principalement de la vitesse superficielle du gaz (*Hulet et al., 2009*), cette dernière est donc la principale variable opératoire de l'étude. Ses effets sont décrits dans la première partie de ce chapitre. L'incertitude associée à la détermination des coefficients de transfert de chaleur a notamment été estimée. Dans une deuxième partie, l'influence de l'orientation du faisceau de tubes, parallèlement à l'axe de la colonne, sera discutée. Enfin, la dernière partie de ce chapitre est consacrée à la modélisation des résultats expérimentaux et à la simulation des profils axiaux de température dans la calandre de la colonne et les tubes de refroidissement.

### III-2 Influence de la vitesse superficielle du gaz

Dans ce chapitre, la pompe permettant la recirculation de l'huile Syltherm XLT® et l'échangeur de chaleur externe de la boucle HORTHENS sont une pompe centrifuge et un échangeur à plaques, respectivement (cf. Chapitre II).

L'étude est limitée à une série de neuf essais, représentatifs du comportement de la boucle HORTHENS lorsque le couple diphasique air-huile Syltherm XLT® est utilisé. Les conditions opératoires sont récapitulées dans le Tableau III.1. Lors de ces essais, la tête de colonne et le réservoir tampon du circuit d'huile, qui participe au processus de désengagement gazeux, étaient à la pression atmosphérique (cf. Chapitre II, Figure II.4).

**Tableau III.1** Conditions opératoires des essais 1 à 9

Essai	$u_G$ (m.s <sup>-1</sup> )	$u_L$ (m.s <sup>-1</sup> )	$u_{eau}$ (m.s <sup>-1</sup> ) tube « long »	$u_{eau}$ (m.s <sup>-1</sup> ) tube « court » <sup>5</sup>
1	0,04	0,08	0,62	0,78
2	0,05	0,08	0,64	0,81
3	0,07	0,08	0,66	0,84
4	0,08	0,08	0,66	0,84
5	0,09	0,08	0,62	0,79
6	0,12	0,08	0,67	0,86
7	0,14	0,08	0,68	0,86
8	0,15	0,08	0,64	0,81
9	0,16	0,08	0,67	0,85

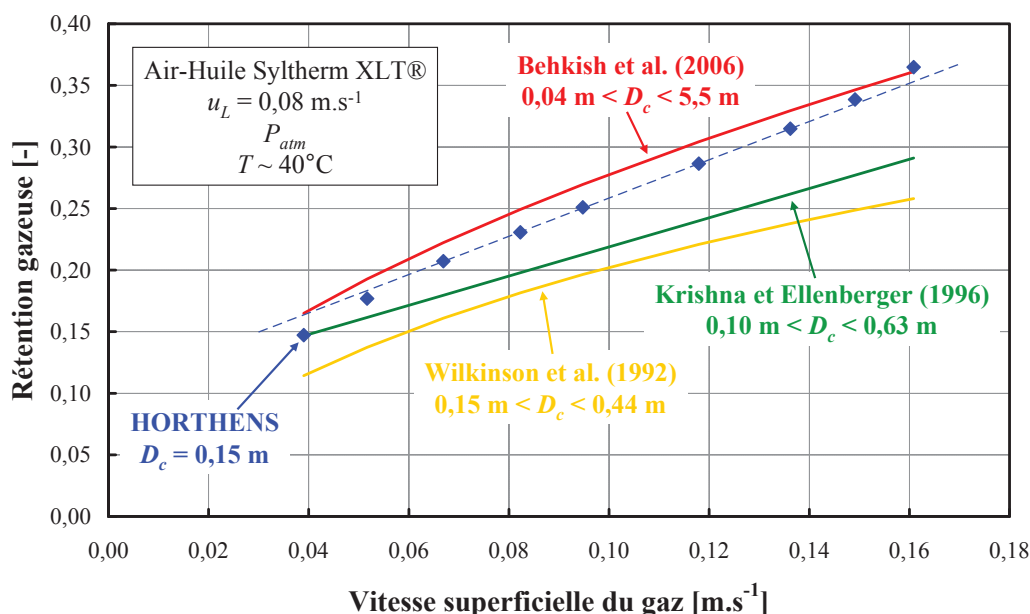
#### III-2.1 Hydrodynamique de la colonne

Les valeurs de rétention gazeuse présentées ici sont les moyennes des valeurs calculées à partir des mesures de pression différentielle sur les trois parties de la section d'essai (cf. Figure II.4). Ce choix a été fait de manière à être le plus représentatif possible de la zone développée de l'écoulement, en limitant l'influence de la zone d'injection du gaz.

<sup>5</sup> Les débits dans les tubes sont légèrement différents, à cause de leur différence de longueur, donc de pertes de charge.

### III-2.1.1 Résultats expérimentaux

La Figure III.1 présente l'évolution de la rétention gazeuse dans la colonne de la boucle HORTHENS en fonction de la vitesse superficielle du gaz. Pour des vitesses superficielles de gaz inférieures à  $0,07 \text{ m.s}^{-1}$ , la rétention gazeuse évolue de manière quasi-linéaire. Des petites bulles ( $d_B < 1 \text{ cm}$ ) sont observées dans l'écoulement diphasique. Elles représentent la population la plus importante. Cependant, des bulles de tailles plus importantes ( $3 < d_B < 5 \text{ cm}$ ), issues de la coalescence de bulles plus petites, sont discernées au centre de la colonne. Leur ascension est plus rapide que celles des petites bulles, et elles ont tendance à monter en spirale. Un tel comportement a été observé par *Warsito et al. (1999)* pour le système air-eau et des vitesses superficielles de gaz comprises entre  $0,01$  et  $0,02 \text{ m.s}^{-1}$ , sans circulation de la phase liquide. Le régime d'écoulement dans la calandre est plus proche du régime de transition que du régime homogène initialement attendu, caractérisé par l'absence du phénomène de coalescence selon *Krishna et Ellenberger (1996)*.



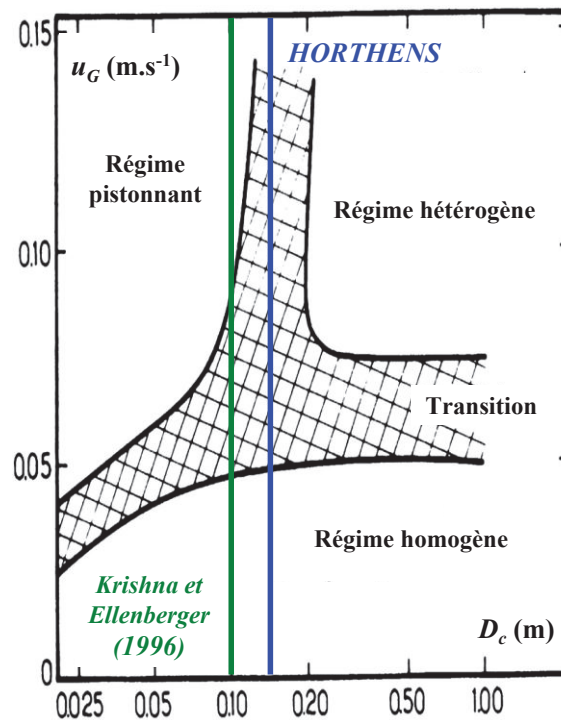
**Figure III.1** Variation de la rétention gazeuse en fonction de la vitesse superficielle du gaz dans la boucle HORTHENS

Au-delà de  $0,07 \text{ m.s}^{-1}$ , le mélange diphasique est de plus en plus agité. Le régime d'écoulement est hétérogène. La rétention gazeuse augmente de façon quasi-linéaire avec la vitesse superficielle du gaz, mais avec une pente moins prononcée. Deux populations de bulles se distinguent : des petites bulles, similaires à celles observées pour les vitesses superficielles de gaz inférieures à  $0,07 \text{ m.s}^{-1}$ , et des grosses bulles ( $d_B > 5 \text{ cm}$ ), visibles aléatoirement aux parois de la colonne. Le centre de la colonne n'est plus visible, à cause de l'agitation de la phase liquide. Cela correspond aux observations rapportées par de nombreux auteurs dans la littérature, bien qu'elles aient été faites dans des colonnes fermées à la phase liquide (*Krishna et Ellenberger, 1996; Lehr et al., 2002*).

De plus, la Figure III.1 compare nos mesures de rétention gazeuse avec trois corrélations de la littérature. Si les évolutions sont similaires, il est difficile de conclure sur les écarts observés. En effet, ces corrélations ont été établies à partir de résultats expérimentaux obtenus dans des colonnes sans internes et fermées à la phase liquide, ce qui n'est pas le cas pour la colonne de la boucle HORTHENS.

Par ailleurs, la pente de variation de la rétention gazeuse augmente encore pour les vitesses superficielles de gaz supérieures à  $0,14 \text{ m.s}^{-1}$ , alors que l'on s'attendait à avoir des valeurs tendant vers une asymptote. Ce résultat est surprenant, mais peut s'expliquer par l'apparition d'un régime quasi-pistonnant dans la colonne. Des variations importantes de la position de la surface libre de la phase liquide ont en effet été observées en tête de colonne, au niveau de la zone de désengagement. Ces variations sont liées au passage de « bouchons gazeux ». De plus, un brouillard de microgouttelettes d'huile apparaît dans la zone de désengagement et semble lié à ce phénomène. La présence d'un faisceau de tubes de refroidissement dans la colonne de la boucle HORTHENS peut expliquer l'apparition de « bouchons gazeux » pour des vitesses superficielles relativement petites. Le pas du faisceau, qui est de 6 cm, peut limiter la taille maximale atteignable par les bulles de gaz. Ce comportement a été observé par *O'Dowd et al. (1987)* dans une colonne de 11 cm de diamètre comportant un faisceau de cinq tubes en Plexiglas® de 2 cm de diamètre, organisés avec un pas carré de 1,5 cm. Si plusieurs bulles d'environ 6 cm de diamètre montent à la même vitesse, à la même altitude et au même moment dans la colonne, l'effet de leur déplacement sera similaire à celui d'une bulle d'un diamètre équivalent au diamètre interne de la colonne, pour une colonne à bulles sans internes.

La carte d'écoulement dans les colonnes à bulles diphasiques sans internes établie par *Deckwer et al. (1980)* va dans le sens cette observation (cf. Figure III.2). La barre bleue dans la Figure III.2 indique la position de la colonne de la boucle HORTHENS dans la carte d'écoulement. Lorsque la vitesse superficielle du gaz dépasse  $0,15 \text{ m.s}^{-1}$ , la carte d'écoulement indique que le régime de transition tend vers le régime pistonnant. Il est surprenant qu'un tel comportement n'ait pas été rapporté dans la littérature, comme par exemple par *Krishna et Ellenberger (1996)*, qui ont utilisé entre autres une colonne de diamètre pourtant inférieur à celui de nos essais, fermée à la phase liquide, et qui ont fait varier la vitesse superficielle du gaz jusqu'à  $0,40 \text{ m.s}^{-1}$ .



**Figure III.2** Carte d'écoulement dans les colonnes à bulles diphasiques, d'après *Deckwer et al. (1980)*©

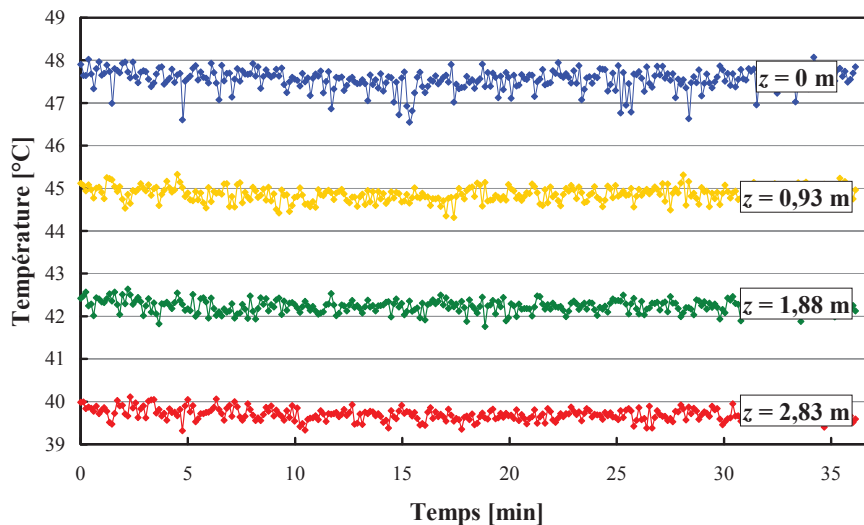
### III-2.1.2 Conclusions

L'évolution de la rétention gazeuse dans la colonne de la boucle HORTHENS est conforme à nos attentes et aux résultats de la littérature pour des vitesses superficielles de gaz inférieures à  $0,14 \text{ m.s}^{-1}$ . Au-delà, un régime quasi-pistonant apparaît dans la calandre de la colonne, probablement lié à la présence du faisceau de tube de refroidissement. Ce phénomène n'a pas été anticipé lors de la conception de la colonne (antérieure à nos travaux), mais son influence sur le transfert thermique dans les colonnes à bulles sera intéressante à étudier.

## III-2.2 Etude thermique

### III-2.2.1 Températures dans la colonne

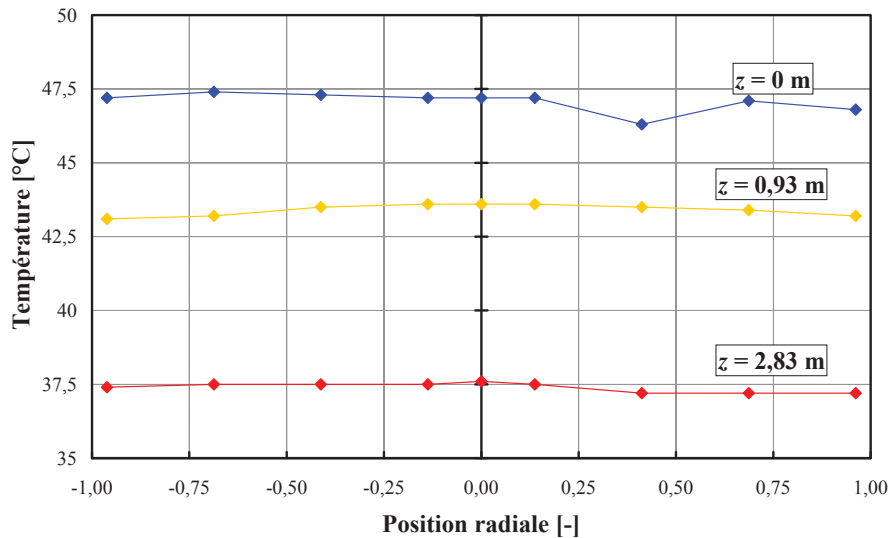
La Figure III.3 présente l'évolution de la température du mélange diphasique air-huile Syltherm XLT® dans la section d'essai, en fonction de l'altitude et du temps, enregistrées pendant l'essai n°1 (cf. Tableau III.1). Lors de cet enregistrement, les thermocouples étaient placés au centre de la colonne. Les signaux enregistrés sont stables dans le temps. Les écarts-types associés à chaque mesure de température sont compris entre  $0,25^\circ\text{C}$ , pour  $z = 0 \text{ m}$ , et  $0,14^\circ\text{C}$ , pour  $z = 2,83 \text{ m}$ . Ils sont supérieurs à l'incertitude d'étalonnage associée à ces thermocouples, qui est de  $0,06^\circ\text{C}$  (cf. Tableau II.4). La diminution de l'écart-type avec l'altitude dans la calandre était attendue et reflète l'établissement d'un régime d'écoulement stable. La même tendance a été observée lors des essais avec des vitesses superficielles de gaz plus importantes.



**Figure III.3** Evolution des températures du mélange diphasique air-huile Syltherm XLT® en fonction du temps et de l'altitude ( $u_G = 0,04 \text{ m.s}^{-1}$  ;  $u_L = 0,08 \text{ m.s}^{-1}$ )

Par ailleurs, des profils radiaux de température pratiquement plats ont été observés dans la calandre de la colonne (cf. Figure III.4). Le décrochement observé à la position radiale 0,4 sur la courbe bleue ( $z = 0 \text{ m}$ ) correspond au passage du thermocouple à proximité d'un tube de refroidissement. Ces profils radiaux plats étaient attendus et demeurent quelle que soit la vitesse superficielle du gaz. La colonne a en effet un diamètre interne relativement faible et un rapport hauteur sur diamètre élevé ( $H_c/D_c = 26$ ), ce qui favorise un écoulement globalement piston dans la calandre. En particulier, aucune boucle de recirculation de taille importante n'a été mise en évidence lors des essais. Pour l'ensemble des essais, les

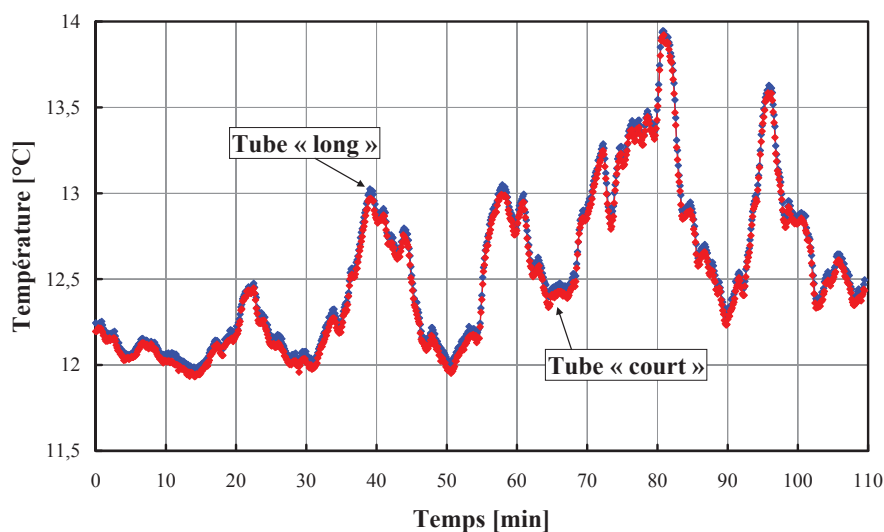
thermocouples mesurant la température du mélange diphasique dans la calandre ont donc été positionnés au centre de la colonne.



**Figure III.4** Profils radiaux de température en fonction de l'altitude dans la colonne ( $u_G = 0,14 \text{ m.s}^{-1}$  ;  $u_L = 0,08 \text{ m.s}^{-1}$ )

### III-2.2.2 Températures d'entrée de l'eau industrielle

Le circuit d'eau de refroidissement étant alimenté par le réseau du bâtiment, la température d'entrée de l'eau dans les tubes est susceptible de varier dans le temps pendant l'enregistrement d'un essai, puisque aucun système de régulation n'a été prévu lors de la conception de la boucle HORTHENS pour éviter l'influence de ce phénomène. En particulier, en été, lorsque la température extérieure est supérieure à  $30^\circ\text{C}$ , des oscillations importantes de la température d'entrée de l'eau (allant jusqu'à  $2^\circ\text{C}$ ) ont pu être observées (cf. Figure III.5). L'influence de ces variations sur la détermination des coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement sera discutée ultérieurement.



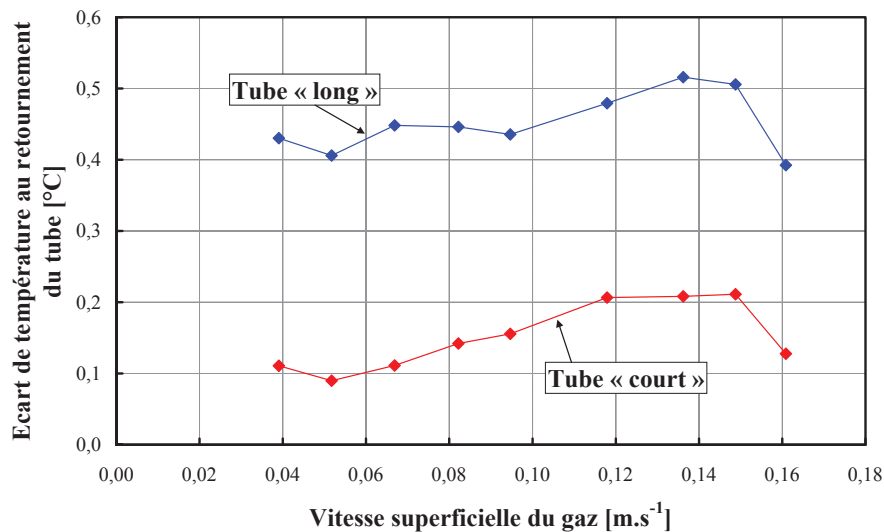
**Figure III.5** Variations de la température d'entrée de l'eau dans les tubes en fonction du temps au cours d'un essai du 02 juillet 2009 (essai n°2)



### III-2.2.3 Ecarts de température au retournement des tubes

Les écarts de température au retournement des tubes sont mesurés à l'aide de thermocouples placés avant et après la partie en U des tubes (cf. thermocouples C et D sur la Figure II.6). La Figure III.6 présente leur évolution en fonction de la vitesse superficielle du gaz pour les essais 1 à 9.

Les écarts au retournement des tubes sont relativement constants, quelle que soit la vitesse superficielle du gaz. L'écart de température au retournement du tube « long » est supérieur d'environ 0,3°C à celui du tube « court ». Cette différence entre les deux tubes s'explique par le fait que le tube « long » passe sous le tube « court » au retournement des tubes et le « protège » de l'écoulement globalement ascendant du mélange diphasique.



**Figure III.6** Evolution des écarts de température aux retournements des tubes en fonction de la vitesse superficielle du gaz pour les essais 1 à 9

L'évaluation des coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes, par partie droite de tubes, repose sur l'hypothèse que le transfert de chaleur dans la partie en U des tubes est négligeable (cf. Chapitre II, paragraphe II-2.2). Pour vérifier cela, les flux thermiques échangés sur l'ensemble de chaque tube et sur la partie en U des tubes sont calculés à l'aide des équations suivantes. Les indices « e », « s », « avR », et « apR » font référence aux thermocouples B, E, C, et D (cf. Figure II.6), respectivement.

$$\Phi_{eau,tube} = \dot{m}_{eau} \cdot C_{p_{eau}} \cdot (T_{eau,s} - T_{eau,e}) \quad (\text{III-1})$$

$$\Phi_{eau,retournement} = \dot{m}_{eau} \cdot C_{p_{eau}} \cdot (T_{eau,apR} - T_{eau,avR}) \quad (\text{III-2})$$

Pour le tube « court », cette hypothèse est vérifiée. La contribution de la partie en U du tube ne représente au maximum que 3 % du flux thermique échangé sur le tube. Pour le tube « long », elle est plus difficile à justifier. Le flux thermique échangé au niveau de la partie en U du tube représente au maximum 7 % du flux thermique échangé sur le tube complet. Faute de mieux, l'hypothèse est considérée comme acceptable pour le tube « long ».

### III-2.2.4 Bilan thermique

Seul le bilan thermique de la section d'essai nous intéresse. Les bilans thermiques dans les autres parties de l'installation ne sont pas utiles pour la détermination des coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement. Le flux total échangé entre le mélange diphasique et l'eau circulant dans les tubes de refroidissement s'écrit :

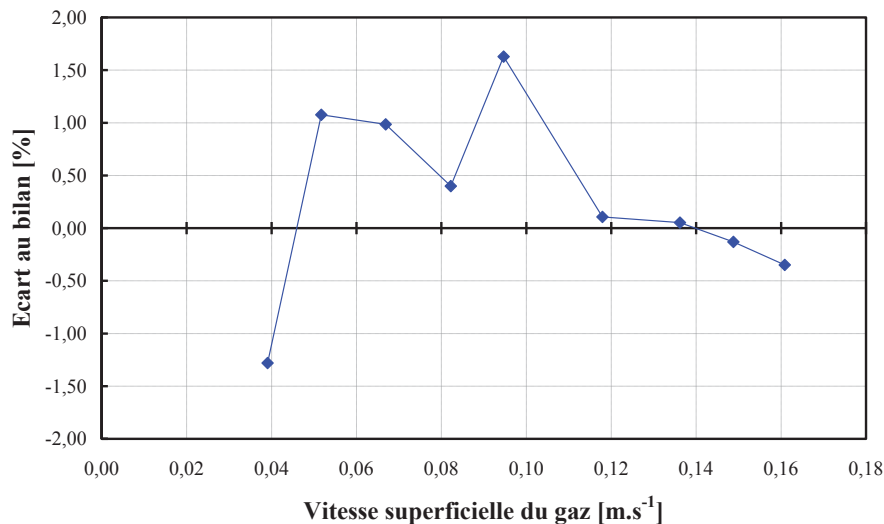
$$\Phi = (\dot{m}_{XLT} \cdot C_{p_{XLT}} + \dot{m}_{air} \cdot C_{p_{air}}) \Delta T_M = \Phi_{XLT} + \Phi_{air} = \sum \Phi_{eau,tube} \quad (\text{III-3})$$

L'écart au bilan thermique,  $b$ , est alors quantifié par l'équation (III-4). Le flux thermique récupéré par l'eau sert de valeur de référence dans le calcul de  $b$ , car, au niveau de la section d'essai, les tubes en U échangent uniquement de la chaleur avec le mélange diphasique circulant dans la calandre.

$$b = \frac{|\Phi_{XLT} + \Phi_{air}| - |\sum \Phi_{eau,tube}|}{|\sum \Phi_{eau,tube}|} \cdot 100 \quad (\text{III-4})$$

Les pertes thermiques à la paroi de la colonne sont *a priori* faibles, la conductivité thermique du PMMA constituant la paroi de la colonne étant petite<sup>6</sup>. Elles ont été estimées pour chaque essai, en supposant que la convection naturelle de l'air à la paroi de la colonne est le principal mécanisme responsable. Les flux thermiques obtenus représentaient moins de 3 % des flux thermiques échangés entre la calandre et les tubes de refroidissement, et sont donc négligeables.

L'écart au bilan thermique pour les essais 1 à 9 est compris entre -1,5 et +1,5 %, ce qui est satisfaisant compte-tenu de la précision de nos capteurs (cf. Figure III.7). C'est une confirmation supplémentaire que les pertes thermiques à la paroi de la colonne peuvent être négligées.



**Figure III.7** Ecart au bilan thermique en fonction de la vitesse superficielle du gaz (essais 1 à 9)

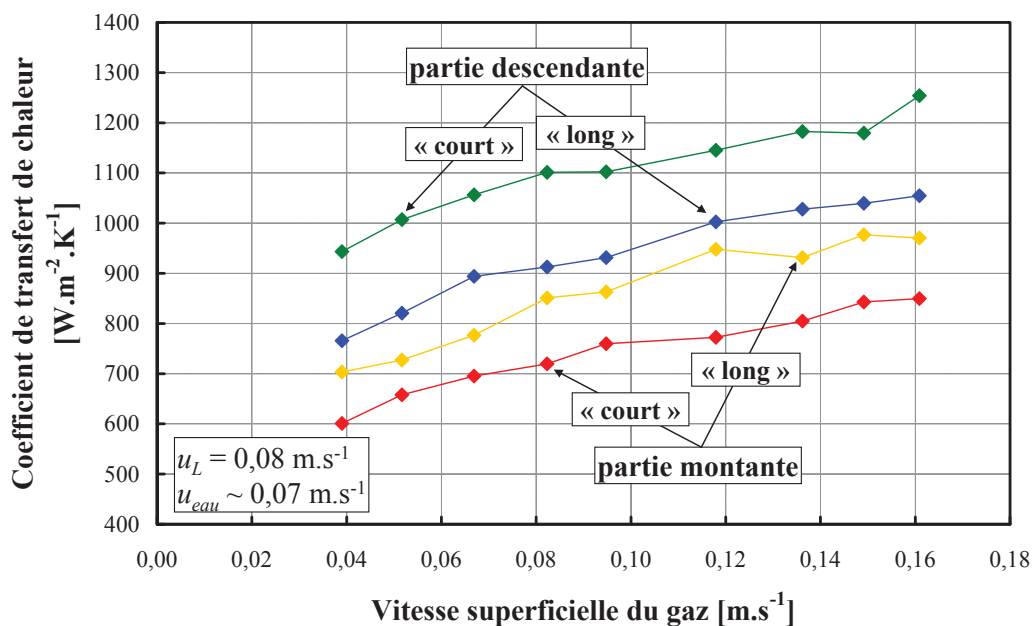
<sup>6</sup>  $\lambda_{PMMA} = 0,21 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$  entre 30 et 60°C, d'après Hu et al. (2007)

Par ailleurs, les températures de part et d'autre du retournement des tubes étant expérimentalement différentes, il est évident que la somme des flux thermiques récupérés par l'eau sur les parties droites montantes et descendantes d'un tube ne pourra jamais atteindre le flux thermique calculé globalement sur le tube en U considéré. Cela aura en particulier un impact significatif sur la modélisation des profils de température du mélange diphasique et de l'eau dans la section d'essai (cf. paragraphe III-4).

### III-2.2.5 Coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes

Les résultats des deux évaluations des coefficients de transfert décrites dans le Chapitre II sont comparés et discutés.

#### III-2.2.5.1 Evaluation d'un coefficient par partie droite de tube



**Figure III.8** Coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des parties droites des tubes de refroidissement

D'une manière générale, la valeur des coefficients de transferts augmente avec la vitesse superficielle du gaz. Ce résultat était attendu et est conforme aux données de la littérature (Deckwer, 1980). De plus, l'apparition d'un régime quasi-pistonnant dans la calandre (cf. paragraphe III-2.1) ne semble pas avoir d'influence sur le transfert thermique, puisque aucune modification significative de la pente d'évolution des coefficients de transfert n'est observée au-delà de 0,14 m.s<sup>-1</sup>.

Les coefficients calculés pour les parties descendantes des tubes sont supérieurs aux coefficients calculés pour les parties montantes. Cependant, les deux tubes semblent avoir un comportement différent vis-à-vis du transfert thermique. Si les coefficients de transfert pour les deux parties du tube « long » semblent relativement proches, les coefficients de transfert pour le tube « court » sont assez éloignés. Ce résultat est surprenant. En effet, le diamètre de la colonne est relativement faible et la turbulence de l'écoulement diphasique importante. Les coefficients de transfert de chaleur calculés sur chaque partie de tube devraient *a priori* être proches les uns des autres, d'autant que le faisceau de tubes est centré dans la colonne. La possibilité d'un biais systématique des mesures de température aux retournements des tubes a

été envisagée, mais écartée après comparaison avec la valeur mesurée dans la calandre à la même altitude, en l'absence d'échange thermique.

### III-2.2.5.2 Evaluation d'un coefficient par tube en U

Contrairement à l'évaluation précédente, les deux tubes semblent avoir un comportement similaire vis-à-vis du transfert de chaleur avec le mélange diphasique circulant dans la calandre de la colonne (cf. Figure III.9). Les résultats obtenus semblent donc plus proches de nos attentes. Il est donc possible que les différences observées sur les résultats de la première méthode de calcul ne soient pas ou peu significatives. Afin de vérifier cette hypothèse, les incertitudes associées aux résultats de nos deux méthodes de calcul ont été estimées.

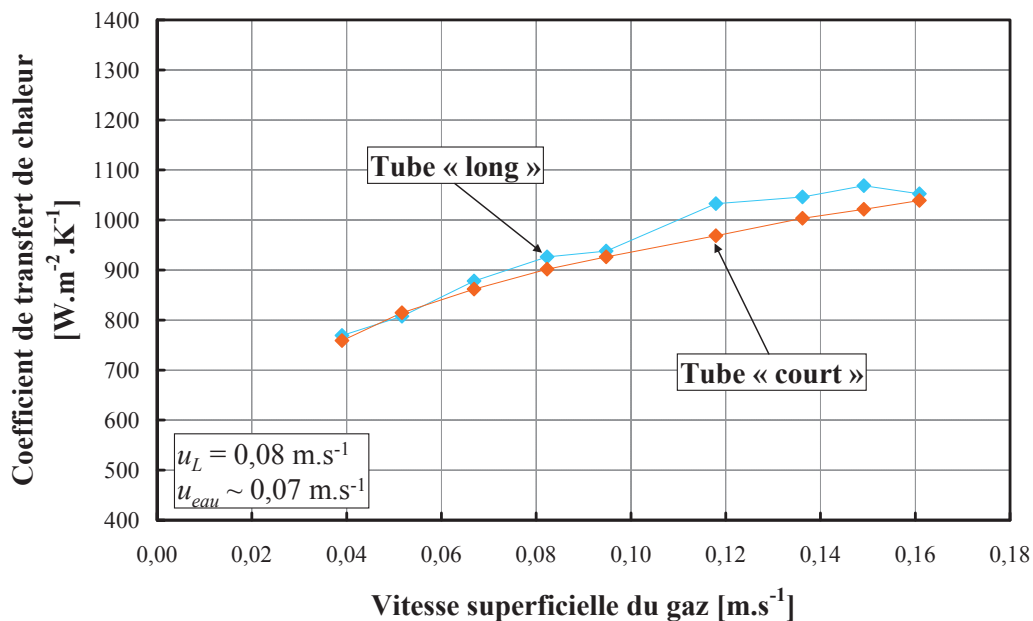


Figure III.9 Coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes en U

### III-2.2.6 Estimation des incertitudes

L'analyse d'incertitude développée ici repose sur l'hypothèse qu'il n'y a pas d'erreurs systématiques : seuls des aléas indépendants sont à l'origine des incertitudes de mesure. Les conclusions tirées quant au caractère significatif ou non d'écarts entre diverses valeurs reflètent cette hypothèse.

#### III-2.2.6.1 Incertitudes sur les grandeurs mesurées

Afin de réduire les erreurs aléatoires, les mesures sont répétées et leur dispersion par rapport à leur valeur moyenne est prise en compte dans le calcul de l'incertitude. L'acquisition des données expérimentales est faite avec une fréquence de 0,14 Hz, pendant une durée au moins égale à une demi-heure. Chaque grandeur utilisée dans les calculs est donc le résultat de la moyenne arithmétique de plus de 200 points. En admettant que, lors d'un essai, les fluctuations des mesures au cours du temps sont identiques aux fluctuations induites par des répétitions indépendantes de cet essai (hypothèse d'ergodicité), l'incertitude associée à la répétition de la mesure peut être estimée au moyen de l'écart-type expérimental, qui caractérise la dispersion des valeurs mesurées autour de leur valeur moyenne.

$$\delta x_{i,dispersion} = \sqrt{\frac{1}{N-1} \sum_{j=1}^N (x_{i,j} - \bar{x}_i)^2}; \quad \bar{x}_i = \frac{1}{N} \cdot \sum_{j=1}^N x_{i,j} \quad (\text{III-5})$$

La réduction des erreurs systématiques passe par l'étalonnage des appareils de mesures. Une incertitude d'étalonnage,  $\delta x_{i,etalonnage}$ , est définie pour chaque capteur, en intégrant les incertitudes liées à :

- ✓ l'étalon de référence,
- ✓ la chaîne d'acquisition,
- ✓ la contribution de l'élément étalonné (fidélité, sensibilité et justesse).

Les incertitudes d'étalonnage des capteurs de la boucle HORTHENS sont données dans le Chapitre II (cf. Tableau II.4).

L'incertitude de mesure associée à chaque grandeur mesurée est définie comme étant l'incertitude combinée de l'incertitude associée à la répétition de la mesure et de l'incertitude d'étalonnage (cf. paragraphe suivant).

$$\delta_c(x_i) = \sqrt{(\delta x_{i,etalonnage})^2 + (\delta x_{i,dispersion})^2} \quad (\text{III-6})$$

### III-2.2.6.2 Incertitudes sur les grandeurs calculées

Soit une grandeur  $Y$ , fonction de plusieurs variables  $X_1, X_2, \dots, X_N$ , qui sont supposées indépendantes, telle que :

$$Y = f(X_1, X_2, \dots, X_N) \quad (\text{III-7})$$

L'incertitude-type composée de  $Y$ ,  $\delta_c(Y)$ , se calcule alors au moyen la **loi de propagation des incertitudes** (*Moffat, 1985*). Par définition, c'est une estimation de l'écart-type associée à la grandeur  $Y$ .

$$\delta_c(Y) = \sqrt{\sum_{i=1}^N \left[ \left( \frac{\partial f}{\partial X_i} \right) \cdot \delta X_i \right]^2} \quad (\text{III-8})$$

En particulier, si  $Y$  est de la forme,

$$Y = c X_1^{p_1} X_2^{p_2} \dots X_N^{p_N}$$

et si les exposants  $p_i$  sont des nombres connus, positifs ou négatifs, d'incertitudes négligeables, alors l'incertitude-type composée de  $Y$  s'écrit :

$$\delta_c(Y) = Y \cdot \sqrt{\sum_{i=1}^N \left[ p_i \cdot \frac{\delta X_i}{X_i} \right]^2} \quad (\text{III-9})$$

### Cas particulier : écart de température moyen logarithmique

Le calcul de l'incertitude-type associée aux écarts de température moyen logarithmique est fait selon les formules suivantes (*Blanc, 1994*). Les notations utilisées sont les mêmes que celles du Chapitre II (cf. Figure II.2).

$$\delta_c(\Delta T_{ML}) = \sqrt{[\alpha \cdot \delta_c(T_{M,1} - T_{eau,1})]^2 + [\alpha \cdot \delta_c(T_{M,2} - T_{eau,2})]^2} \quad \text{(III-10)}$$

Le coefficient  $\alpha$  est calculé par l'équation suivante.

$$\alpha = \frac{\ln\left(\frac{T_{M,1} - T_{eau,1}}{T_{M,2} - T_{eau,2}}\right) - \frac{(T_{M,1} - T_{eau,1}) - (T_{M,2} - T_{eau,2})}{T_{M,1} - T_{eau,1}}}{\left[\ln\left(\frac{T_{M,1} - T_{eau,1}}{T_{M,2} - T_{eau,2}}\right)\right]^2} \quad \text{(III-11)}$$

### III-2.2.7 Analyse des résultats

#### III-2.2.7.1 Evaluation d'un coefficient par partie droite de tube

Le Tableau III.2 récapitule les incertitudes de calcul associées aux coefficients de transfert de chaleur. Les incertitudes liées à la mesure des longueurs et des diamètres ont été négligées dans l'ensemble des calculs. La lecture du tableau ci-dessous conduit aux remarques suivantes :

- ✓ les incertitudes de calcul augmentent entre les essais pour chaque partie de tube, si les valeurs calculées pour les essais n°2, 3 et 7 ne sont pas prises en compte ;
- ✓ il existe une dissymétrie entre les tubes : la partie descendante du tube « long » a une incertitude de calcul plus faible que celle de la partie montante ; pour le tube « court », c'est l'inverse.
- ✓ la partie descendante du tube « court » a une incertitude de calcul plus importante que celles des autres parties de tubes.

**Tableau III.2** Incertitudes de calcul des coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des parties de tubes pour les essais 1 à 9

Essai	Partie descendante du tube « long »	Partie montante du tube « long »	Partie descendante du tube « court »	Partie montante du tube « court »
	$\delta_c(h_M) \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$	$\delta_c(h_M) \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$	$\delta_c(h_M) \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$	$\delta_c(h_M) \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$
1	50	58	83	54
2	213	212	283	226
3	63	74	102	70
4	54	67	94	58
5	58	70	95	63
6	63	81	103	66
7	97	115	141	107
8	67	81	105	69
9	69	83	113	71

L'étude de la propagation des incertitudes dans les calculs permet d'expliquer ces résultats et les différences observées entre les deux tubes. Le Tableau III.3 regroupe les incertitudes de mesures des débits et températures utilisés dans les calculs de coefficient de transfert de chaleur. Le Tableau III.4 regroupe les incertitudes de calcul des étapes-clés de la détermination des coefficients de transfert de chaleur. Les principales sources d'incertitude dans le calcul des coefficients sont les mesures de température de l'eau circulant dans les tubes (cf. Figure III.10).

**Tableau III.3** Incertitudes de mesure pour les essais 1 à 9

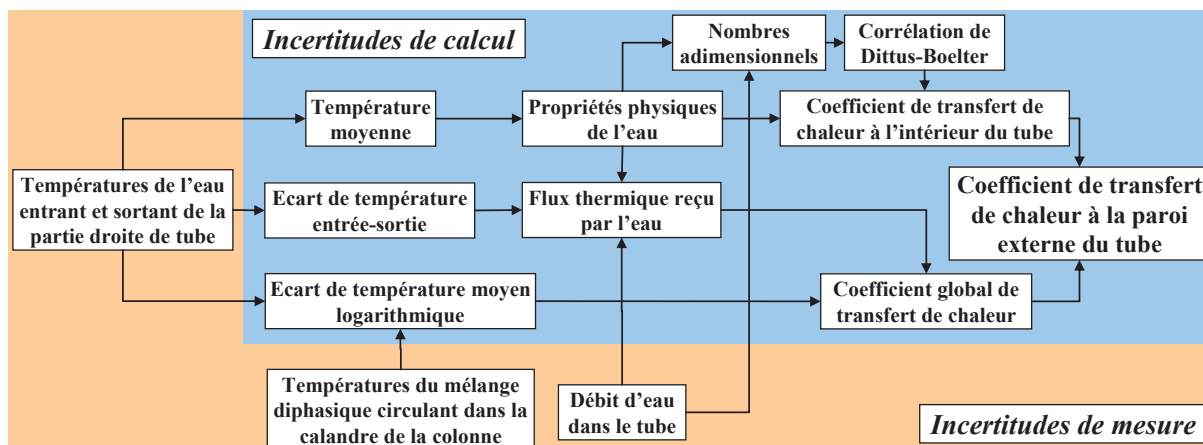
Essai	Calandre		Tube « long »					Tube « court »				
	$T_{M,e}$ [°C]	$T_{M,s}$ [°C]	$Q_{eau,long}$ [m <sup>3</sup> .h <sup>-1</sup> ]	partie descendante		partie montante		$Q_{eau,court}$ [m <sup>3</sup> .h <sup>-1</sup> ]	partie descendante		partie montante	
				$T_{eau,e}$ [°C]	$T_{eau,avR}$ [°C]	$T_{eau,apR}$ [°C]	$T_{eau,s}$ [°C]		$T_{eau,e}$ [°C]	$T_{eau,avR}$ [°C]	$T_{eau,apR}$ [°C]	$T_{eau,s}$ [°C]
1	0,25	0,15	0,003	0,07	0,14	0,11	0,12	0,013	0,13	0,14	0,11	0,09
2	0,29	0,26	0,003	0,43	0,41	0,41	0,39	0,014	0,43	0,42	0,41	0,39
3	0,21	0,16	0,003	0,08	0,14	0,13	0,13	0,013	0,14	0,15	0,13	0,10
4	0,22	0,16	0,003	0,05	0,13	0,10	0,11	0,013	0,12	0,13	0,10	0,08
5	0,19	0,16	0,003	0,06	0,13	0,11	0,12	0,013	0,12	0,13	0,11	0,08
6	0,24	0,16	0,003	0,05	0,13	0,11	0,12	0,013	0,12	0,14	0,11	0,08
7	0,23	0,17	0,003	0,12	0,17	0,17	0,16	0,013	0,17	0,18	0,16	0,14
8	0,22	0,15	0,003	0,07	0,13	0,11	0,12	0,013	0,13	0,13	0,11	0,08
9	0,20	0,15	0,004	0,06	0,13	0,11	0,12	0,014	0,12	0,13	0,11	0,08

**Tableau III.4** Incertitudes de calcul, par partie de tube, pour les essais 1 à 9

Essai	Ecart de température [°C]				Flux thermique [W]				Coefficient global de transfert de chaleur [W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup> ]				Coefficient de transfert de chaleur à l'intérieur des tubes [W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup> ]			
	« long »		« court »		« long »		« court »		« long »		« court »		« long »		« court »	
	d	m	d	m	d	m	d	m	d	m	d	m	d	m	d	m
1	0,15	0,17	0,19	0,15	159	170	252	191	23	28	36	31	23	20	44	37
2	0,60	0,57	0,60	0,56	638	600	820	759	94	102	120	125	84	66	108	89
3	0,16	0,19	0,20	0,16	180	203	288	230	27	35	42	38	25	24	47	39
4	0,14	0,15	0,18	0,13	150	169	253	184	22	29	37	31	21	20	44	36
5	0,15	0,16	0,18	0,14	153	167	248	185	23	30	37	32	22	19	43	36
6	0,14	0,16	0,18	0,14	159	182	263	196	25	33	40	34	22	21	45	36
7	0,21	0,23	0,24	0,21	242	264	353	309	37	48	54	54	33	30	54	45
8	0,15	0,16	0,18	0,14	160	173	256	188	25	32	39	33	23	21	44	36
9	0,14	0,16	0,18	0,13	162	178	260	192	26	34	41	35	22	21	44	37

**Notations :**

- ✓ « long » = tube « long »
- ✓ « court » = tube « court »
- ✓ d = partie droite descendante du tube
- ✓ m = partie droite montante du tube



**Figure III.10** Propagation des incertitudes lors du calcul des coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement

Le fait que les incertitudes de calculs augmentent entre les essais traduit l'augmentation de la valeur du coefficient de transfert de chaleur. En effet, l'incertitude combinée sur les coefficients de transfert est calculée à l'aide d'une équation similaire à l'équation (III-9). Cependant, les incertitudes relatives (i.e.  $\delta_c(h_M)/h_M$ ) restent quasiment constantes, si les essais n°2, 3 et 7 ne sont pas pris en compte. Cela était attendu, puisque les essais ont été réalisés en régime thermique permanent.

Dans le cas des essais n°2, 3 et 7, ce sont les fluctuations des températures de l'eau dans le temps qui génèrent une plus grande incertitude sur les valeurs des températures (cf. équation (III-6) et Tableau III.3), incertitude qui se propage ensuite dans la chaîne de calcul. En particulier, l'essai n°2 est celui dont les variations des températures d'entrée de l'eau dans les tubes sont présentées sur la Figure III.5. Ces essais ont été volontairement pris en compte afin de souligner la nécessité de contrôler la température d'entrée de l'eau dans les tubes. Néanmoins, les coefficients de transfert de chaleur calculés pour les essais n°2, 3 et 7 ne semblent pas aberrants, comparés aux valeurs obtenues pour les autres essais (cf. Figure III.8). L'incertitude calculée surestime donc l'effet de la température d'entrée de l'eau dans les tubes sur l'incertitude finale du coefficient de transfert de chaleur. Ce résultat découle de l'hypothèse de l'indépendance des variables faite lors de l'utilisation la loi de propagation des incertitudes.

Les dissymétries observées entre les tubes et entre les parties de tubes concernant les incertitudes sur le calcul des coefficients de transfert de chaleur proviennent essentiellement des incertitudes de mesures des thermocouples mesurant la température de l'eau dans les tubes. Leurs incertitudes d'étalonnage, leurs écarts-types expérimentaux (cf. équation (III-5)) et leurs incertitudes de mesure (cf. équation (III-6)) pour l'essai n°1 sont détaillées dans le Tableau III.5.

**Tableau III.5** Incertitudes de mesure des thermocouples instrumentant les tubes (essai n°1)

Incertitudes	Tube « long »				Tube « court »			
	partie descendante		partie montante		partie descendante		partie montante	
	$T_{eau,e}$ [°C]	$T_{eau,avR}$ [°C]	$T_{eau,apR}$ [°C]	$T_{eau,s}$ [°C]	$T_{eau,e}$ [°C]	$T_{eau,avR}$ [°C]	$T_{eau,apR}$ [°C]	$T_{eau,s}$ [°C]
Etalonnage	0,04	0,12	0,10	0,10	0,11	0,12	0,10	0,07
Ecart-type expérimental	0,06	0,06	0,05	0,07	0,06	0,07	0,06	0,06
Mesure	0,07	0,17	0,11	0,12	0,13	0,14	0,11	0,09



Les incertitudes de calculs les plus importantes concernent les parties de tubes pour lesquelles les deux thermocouples ont des incertitudes d'étalonnage élevées. Dans le cas de la partie descendante du tube « court », l'incertitude de mesure sur le débit d'eau circulant dans le tube joue aussi un rôle. En effet, cette dernière est nettement supérieure à celle sur le débit d'eau dans le tube « long » (cf. Tableau III.3). Cette différence est la résultante d'un étalonnage moins précis pour le débitmètre instrumentant le tube « court » (cf. Tableau II.4). Or, l'incertitude sur le débit d'eau a une influence sur l'incertitude du coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe du tube, à travers son impact sur le calcul du flux thermique reçu par l'eau (cf. Figure III.10). En conséquence, cela induit une incertitude de calcul plus grande pour la partie descendante du tube « court ». En revanche, l'étalonnage des deux thermocouples mesurant la température de l'eau dans la partie montante du tube est plus précis. Il minimise l'influence de l'incertitude de mesure du débit d'eau sur l'incertitude associée aux coefficients de transfert de chaleur.

### III-2.2.7.2 Evaluation d'un coefficient par tube en U

Les observations faites dans le paragraphe précédent restent valables pour les coefficients calculés pour chaque tube en U. La principale source d'incertitude est l'incertitude de mesure des températures de l'eau circulant dans les tubes. Les essais n°2 et 7 se démarquent encore par des incertitudes de calcul plus élevées que pour les autres essais (cf. Tableau III.6).

Il est par ailleurs surprenant de constater que les incertitudes sur les calculs sont du même ordre de grandeur que pour la méthode de calcul précédente. En effet, la détermination des coefficients de transfert de chaleur repose sur les mesures d'un nombre moins important de thermocouples, puisque les mesures de température de l'eau avant et après le retournement des tubes ne sont plus utilisées. De plus, les calculs de flux thermique reposent sur des écarts de température plus importants, puisque ce sont les écarts de température entre l'entrée et la sortie des tubes qui sont considérés, et non plus les écarts de température sur les seules parties droites. En conséquence, les incertitudes de calcul devraient diminuer, l'influence des incertitudes de mesure sur le calcul du flux thermique reçu par l'eau devenant plus faible. Or, ce n'est pas le cas.

**Tableau III.6** Incertitudes de calcul des coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes en U pour les essais 1 à 9

Essai	Tube « long »	Tube « court »
	$\delta_c(h_M) \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$	$\delta_c(h_M) \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$
1	61	68
2	192	218
3	69	79
4	65	74
5	65	75
6	78	81
7	103	112
8	79	85
9	76	86

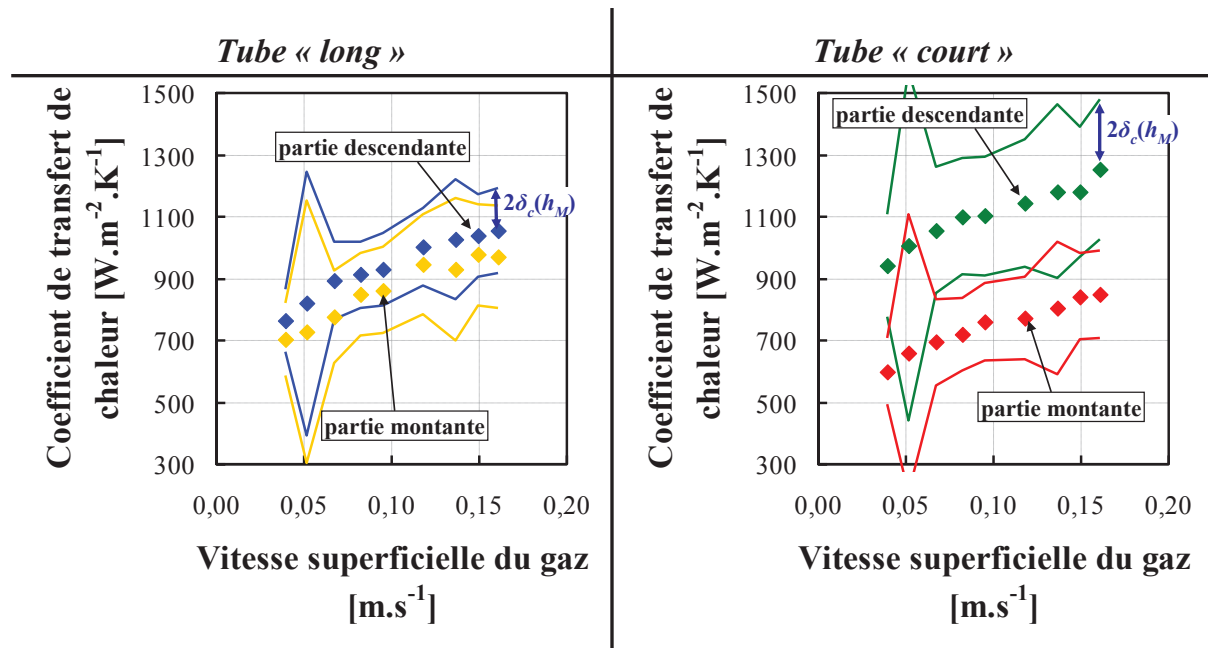
L'une des raisons expliquant ces incertitudes de calculs relativement élevées, est la prise en compte, dans l'incertitude combinée sur le coefficient global de transfert de chaleur, de l'incertitude sur le calcul du facteur correctif,  $F$  (cf. équation (II-12)), de l'écart de température moyen logarithmique. Cette incertitude de calcul dépend elle-même des incertitudes sur le calcul des paramètres adimensionnels  $R$  et  $P$ , qui sont fonction des

températures, de l'eau dans les tubes et du mélange diphasique dans la calandre, en entrée et en sortie de la section d'essai (cf. Chapitre II).

### III-2.2.8 Conséquences pour les coefficients de transfert de chaleur

#### III-2.2.8.1 Evaluation d'un coefficient par partie droite de tube

La Figure III.11 présente les bandes d'incertitude de calcul associées aux coefficients de transfert calculés pour les deux tubes (courbes continues de même couleur que les coefficients auxquels elles sont associées). Leur demi-largeur correspond au double de la valeur de l'incertitude de calcul (i.e.  $2\delta_c(h_M)$ ). L'importance des incertitudes pour les essais n°2 et 7 (i.e. à  $u_G = 0,05$  et  $0,14$  m.s<sup>-1</sup>, respectivement) reflète les variations de la température d'entrée de l'eau dans les tubes avec le temps. Pour le tube « long », le recouvrement des bandes d'incertitudes est important. L'écart entre les deux coefficients n'est pas ou peu significatif, conformément à nos attentes. Au contraire, pour le tube « court », les bandes d'incertitude ne se recouvrent pas, indiquant un écart significatif entre les coefficients des deux parties de tubes. Ce résultat est surprenant, mais reflète les différences existantes entre les écarts de température mesurés sur les parties montante et descendante du tube « court ».

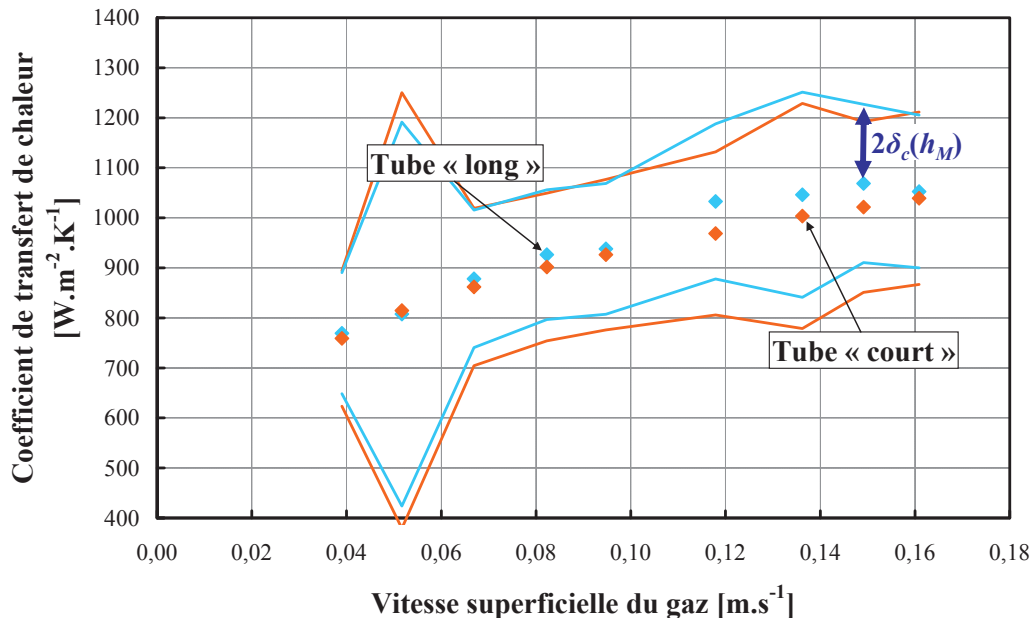


**Figure III.11** Incertitudes sur les coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des parties droites de tubes (essais 1 à 9)

En effet, pour les essais 1 à 9, l'écart de température moyen mesuré entre l'entrée et la sortie de la partie descendante du tube « court » est d'environ 3,4°C, contre seulement 2,3°C pour la partie montante. A titre de comparaison, les écarts de température pour le tube « long » sont d'environ 3,7°C pour la partie descendante et 3,0°C pour la partie montante. Les deux parties descendantes des tubes sont donc quasi-identiques du point de vue de l'échange thermique. Il est cependant plus difficile de conclure pour les deux parties montantes. Est-ce la partie montante du tube « long » qui participe plus activement à l'échange de chaleur avec le mélange diphasique ? Est-ce que le transfert de chaleur au niveau de la partie montante du tube « court » est dégradé ? Est-ce une combinaison des deux phénomènes ? Alternativement, la qualité des mesures de températures au retournement des tubes peut aussi être remise en question.

### III-2.2.8.2 Evaluation d'un coefficient par tube en U

Le recouvrement des bandes d'incertitude de calcul pour les coefficients calculés pour chaque tube en U est important (cf. Figure III.12). La différence entre les deux tubes n'est donc pas significative. La différence obtenue entre les coefficients calculés pour les parties descendante et montante du tube « court » est d'autant plus marquante. Elle nous a amené à nous interroger sur l'écoulement du mélange diphasique autour du faisceau de tubes.



**Figure III.12** Incertitudes sur les coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes en U (essais 1 à 9)

Or, le faisceau de tube de la boucle HORTHENS a été légèrement vrillé lors d'un incident antérieur à nos travaux. Pendant un essai de mise en pression de l'installation par les équipes du LETh, la colonne s'est en effet rompue en deux parties, sous la zone de séparation liquide-gaz. La partie supérieure s'est soulevée en entraînant avec elle le faisceau de tube. Les parties droites du tube « long » ont alors été légèrement courbées, donnant une forme de banane à l'ensemble du tube. Cette anomalie du faisceau peut peut-être provoquer une modification de l'hydrodynamique de la colonne, au moins au niveau local, donc avoir une influence sur le transfert de chaleur à la paroi externe des tubes. Afin de vérifier cette hypothèse, l'orientation du faisceau de tube a été modifiée d'un angle de 90°, parallèlement à l'axe de la colonne.

## III-3 Influence de l'orientation du faisceau de tubes

### III-3.1 Conditions opératoires

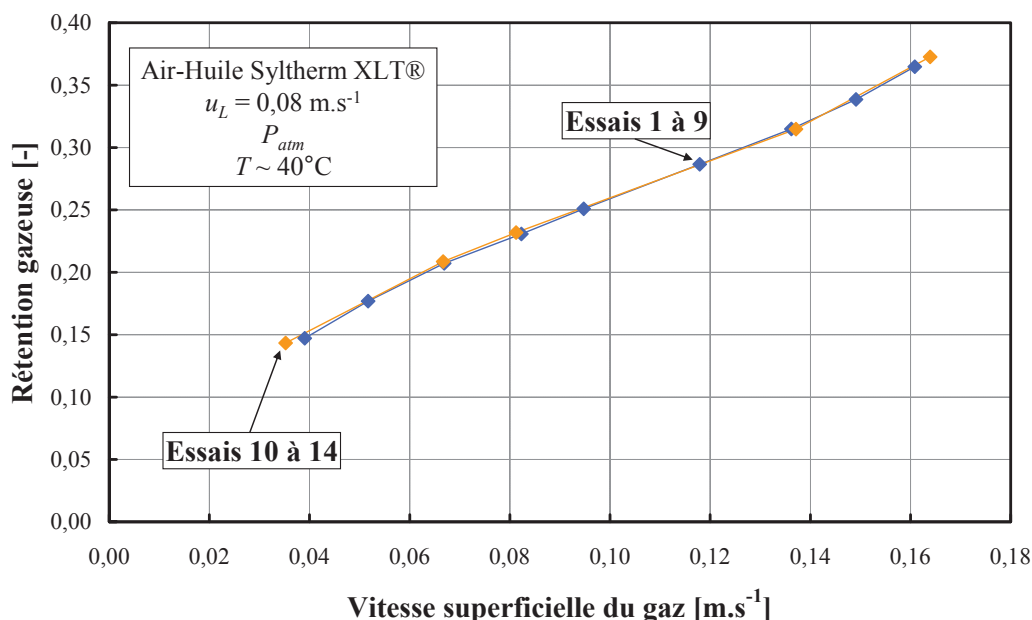
Les conditions opératoires de cette deuxième série d'essai sont récapitulées dans le Tableau III.7. La configuration de la boucle HORTHENS n'est plus la même pour cette série d'essai. La pompe de recirculation de l'huile Syltherm XLT® et l'échangeur de chaleur externe sont une pompe à piston rotatif et un échangeur coaxial cintré, respectivement. Cette configuration correspond à celle utilisée pour les essais en slurry. Cependant, ces modifications ne devraient pas avoir d'influence sur le calcul des coefficients de transfert de chaleur, puisqu'elles sont extérieures à la section d'essai.

**Tableau III.7** Conditions opératoires des essais 10 à 14

Essai	$u_G$ (m.s <sup>-1</sup> )	$u_L$ (m.s <sup>-1</sup> )	$u_{eau}$ (m.s <sup>-1</sup> ) tube « long »	$u_{eau}$ (m.s <sup>-1</sup> ) tube « court »
10	0,04	0,08	0,64	0,80
11	0,07	0,08	0,63	0,80
12	0,08	0,08	0,63	0,80
13	0,14	0,08	0,61	0,77
14	0,16	0,08	0,61	0,77

### III-3.2 Réretention gazeuse

La Figure III.13 compare les valeurs de réretentions gazeuses mesurées pour les deux séries d'essais. La reproductibilité entre les deux séries d'essai est bonne. En particulier, l'apparition d'un régime quasi-pistonnant est encore observée pour les vitesses superficielles de gaz supérieures à 0,14 m.s<sup>-1</sup>. L'orientation du faisceau de tubes dans la colonne n'a donc pas d'influence sur la réretention gazeuse globale dans la colonne. S'il existe une différence du point de vue thermique entre les deux séries d'essais, la réretention gazeuse globale ne sera donc pas un paramètre satisfaisant pour la caractériser.

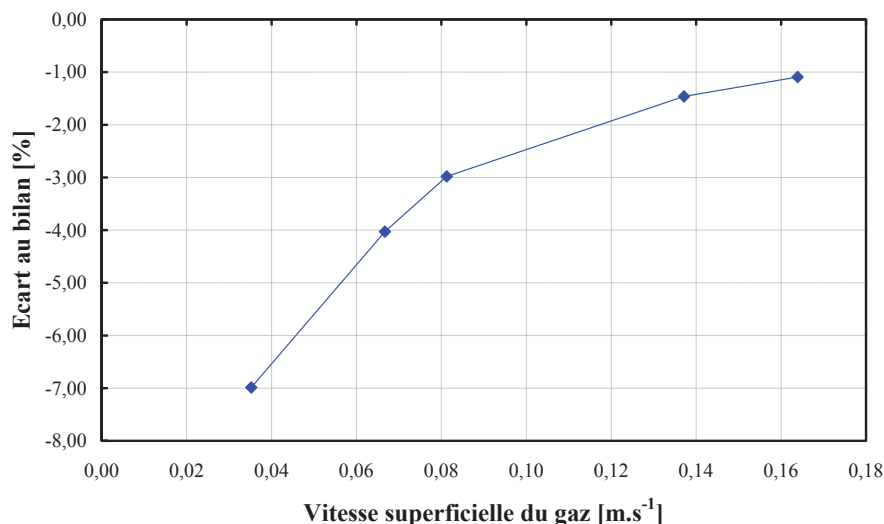


**Figure III.13** Influence de l'orientation du faisceau de tube, parallèlement à l'axe de la colonne, sur la réretention gazeuse dans la colonne

### III-3.3 Bilan thermique

L'écart au bilan thermique est moins bon pour cette deuxième série d'essai (cf. Figure III.14). Cette différence s'explique en partie par la dégradation de la pompe à piston rotatif. Cette dernière s'est traduite par la libération dans l'huile, de petites particules, invisibles à l'œil nu pendant les essais, mais qui ont eu tendance à s'agréger à la paroi externe des tubes lors des arrêts. L'apparition de ces particules s'est caractérisée par un changement de couleur de l'huile Syltherm XLT®, qui est devenue petit à petit grise, voire noire. Aucune analyse particulière du type de particules n'a été réalisée par manque de temps. Le fournisseur de la pompe s'est révélé incapable de préciser l'origine exacte de ces particules. Il a simplement constaté une usure importante d'une bague en carbone du piston. Cette explication n'a pas été jugée satisfaisante, les particules ayant des propriétés magnétiques. La quantité de particules

libérées a augmenté dans le temps, comme l'ont indiqué à la fois l'augmentation du débit massique d'huile mesuré par le débitmètre à effet Coriolis (alors que la consigne du variateur de la pompe n'a pas été modifiée entre les essais) et le changement de couleur progressif de l'huile, de translucide à gris sombre.



**Figure III.14** *Ecart au bilan thermique en fonction de la vitesse superficielle du gaz (essais 10 à 14)*

De plus, il existe un doute quant aux propriétés physique de l'huile utilisée pour les essais 10 à 14. En effet, cette dernière a été polluée en deux occasions :

- ✓ lors de l'installation de la pompe à piston excentrée, par une autre huile présente dans la tête de pompe ;
- ✓ lors du premier démarrage de cette pompe, par une première pollution aux particules par dégradation de la pompe.

Elle n'a pu être remplacée, car nous ne disposions plus de quantité suffisante d'huile propre pour mener à bien nos essais. Suite à la première pollution, aucune séparation entre les huiles n'a pu être réalisée, leur miscibilité étant trop importante. Après la première pollution aux particules, l'huile a été filtrée en boucle fermée sur un filtre de 3  $\mu\text{m}$ , qui s'est avéré suffisant pour éliminer le plus gros des particules.

Les propriétés physiques du liquide circulant dans la calandre de la colonne pour les essais 10 à 14 sont donc sans doute proches de celles de l'huile Syltherm XLT® pure, mais n'ont pas été caractérisées avec précision. De plus, la libération continue de particules pendant les essais modifie en permanence les propriétés physiques de la phase « liquide ». L'écart au bilan thermique ne peut donc être qu'approximatif. Cependant, cela n'a pas d'influence sur la détermination des coefficients de transfert de chaleur, puisque les calculs ne font pas intervenir les propriétés physiques de la phase liquide circulant dans la calandre.

### ***III-3.4 Ecart de température au retournement des tubes***

La Figure III.15 présente l'évolution des écarts de température au retournement des tubes pour les essais 10 à 14. Ces écarts sont plus importants que pour les essais 1 à 9 (cf. Figure III.6), mais l'écart de température entre les deux tubes reste pratiquement constant. L'augmentation des écarts de température au retournement des tubes traduit des températures

d'entrée de l'huile Syltherm XLT® plus importantes de 2 à 3°C pour les essais 10 à 14 que pour la première série d'essais. Le fait que l'écart de température entre les deux tubes reste identique entre les deux séries d'essais indique que l'orientation du faisceau de tube n'a pas d'influence sur le transfert de chaleur au retournement des tubes.

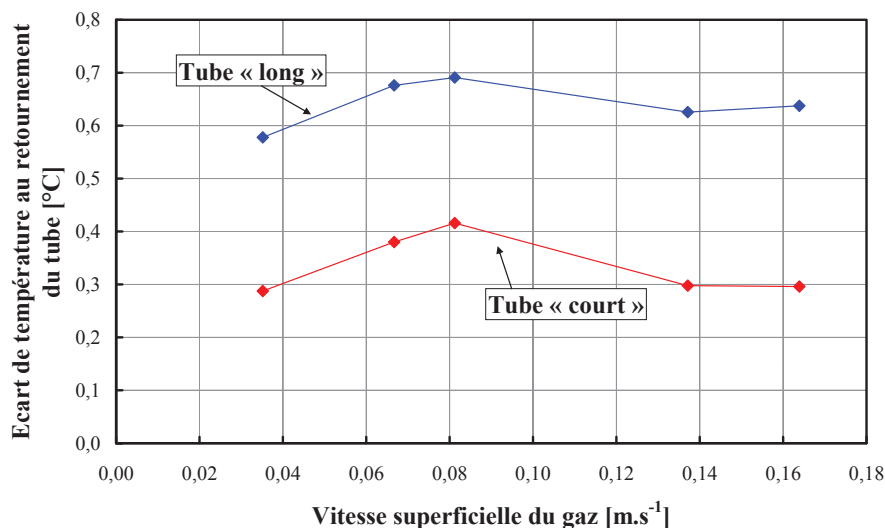


Figure III.15 Evolution des écarts de température au retournement des tubes avec la vitesse superficielle du gaz pour les essais 10 à 14

### III-3.5 Coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes

#### III-3.5.1.1 Evaluation d'un coefficient par partie droite de tube

Pour le tube « court », les tendances observées pour les essais 1 à 9 restent valables pour les essais 10 à 14 (cf. Figure III.16).

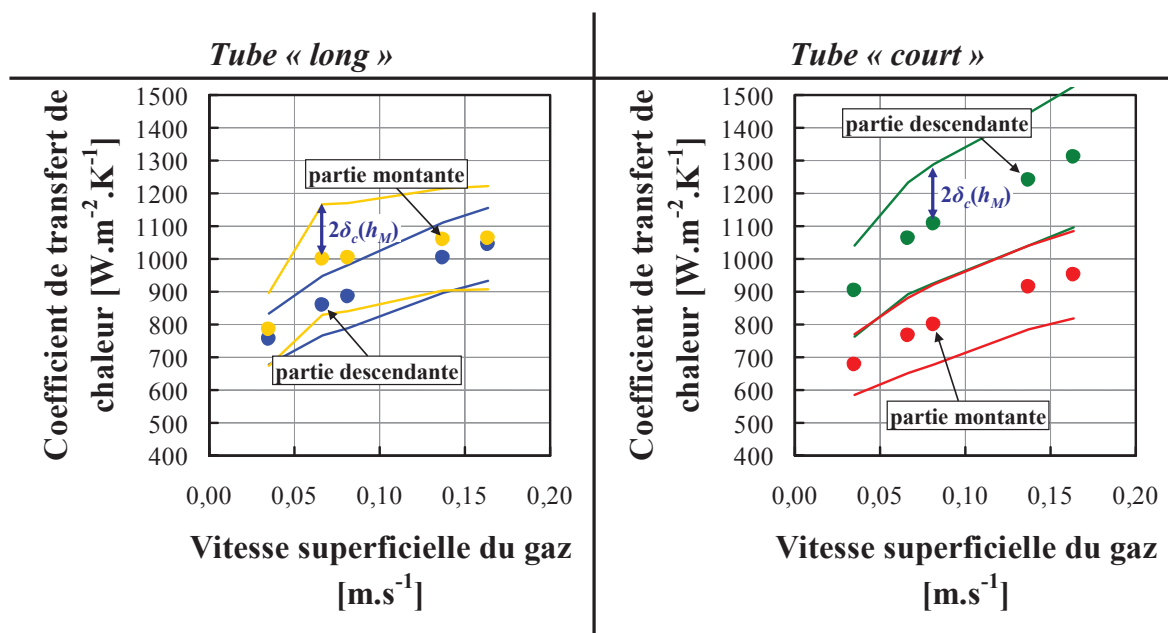


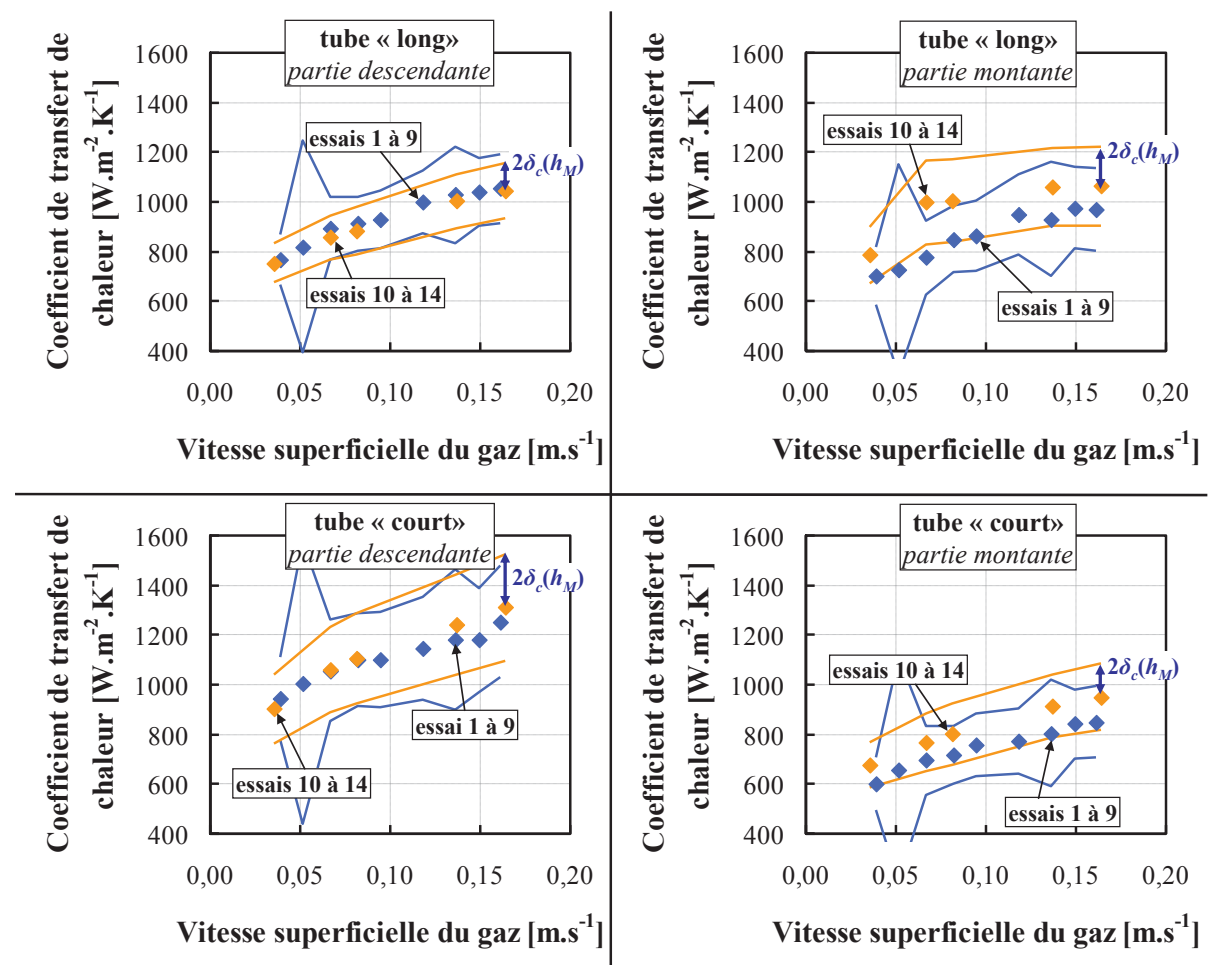
Figure III.16 Coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des parties droites de tubes pour les essais 10 à 14

En revanche, pour le tube « long », il existe une dissymétrie entre les deux séries d'essais. Les coefficients de transfert de chaleur de la partie droite descendante du tube sont inférieurs à ceux de la partie montante, alors que l'inverse était observé pour les essais 1 à 9 (cf. Figure III.11). Les incertitudes de calcul pour les essais 10 à 14 sont du même ordre de grandeur, pour chaque partie de tube, à celles des essais 1 à 9 (cf. Tableau III.8). Bien que les incertitudes augmentent entre les essais, les incertitudes relatives (i.e.  $\delta_c(h_M)/h_M$ ) restent quasiment constantes, comme pour la première série d'essais. Comme précédemment, l'écart entre les coefficients du tube « court » est significatif (cf. Figure III.16).

**Tableau III.8** Incertitudes de calcul des coefficients de transfert de chaleur par partie droite de tube pour les essais 10 à 14

Essai	Partie descendante du tube « long »	Partie montante du tube « long »	Partie descendante du tube « court »	Partie montante du tube « court »
	$\delta_c(h_M)$ W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>	$\delta_c(h_M)$ W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>	$\delta_c(h_M)$ W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>	$\delta_c(h_M)$ W.m <sup>-2</sup> .K <sup>-1</sup>
10	39	56	69	46
11	45	85	85	58
12	48	83	91	61
13	54	78	101	64
14	56	79	107	66

La Figure III.17 présente la comparaison entre les coefficients de transfert de chaleur calculés pour les essais 1 à 9 (en bleu) et ceux calculés pour les essais 10 à 14 (en orange).



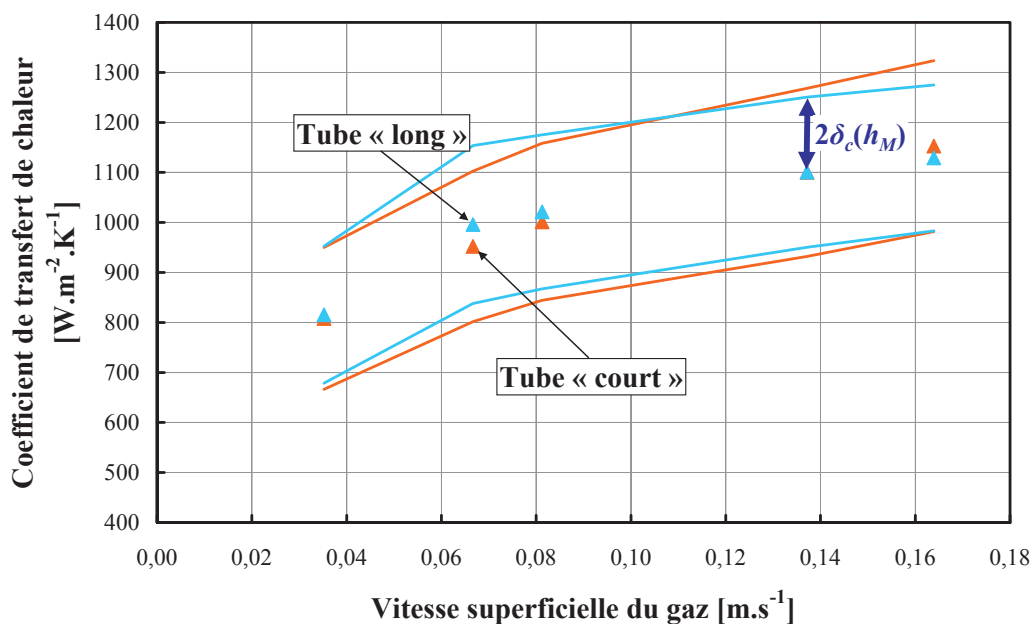
**Figure III.17** Influence de l'orientation du faisceau de tubes sur la valeur des coefficients de transfert de chaleur calculés pour chaque partie droite de tube

Les écarts maximums observés entre les coefficients des deux séries d'essais sont de l'ordre de grandeur des incertitudes de calcul. Pour les deux tubes, le changement d'orientation du faisceau de tubes entraîne une augmentation des coefficients de transfert de chaleur sur les parties droites montantes, alors que leurs valeurs ne changent pas de manière significative pour les parties descendantes.

Le changement d'orientation du faisceau de tubes n'a donc pas permis d'expliquer les différences observées entre le tube « long » et le tube « court ». En particulier, l'écart entre les coefficients calculés sur les parties descendante et montante du tube « court » n'est pas compris. Un doute existe donc quant à la fiabilité des mesures de température au retournement des tubes. Cependant, cette deuxième série d'essais a mis en évidence que l'orientation du faisceau de tubes semble modifier le transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement.

### III-3.5.1.2 Evaluation d'un coefficient par tube en U

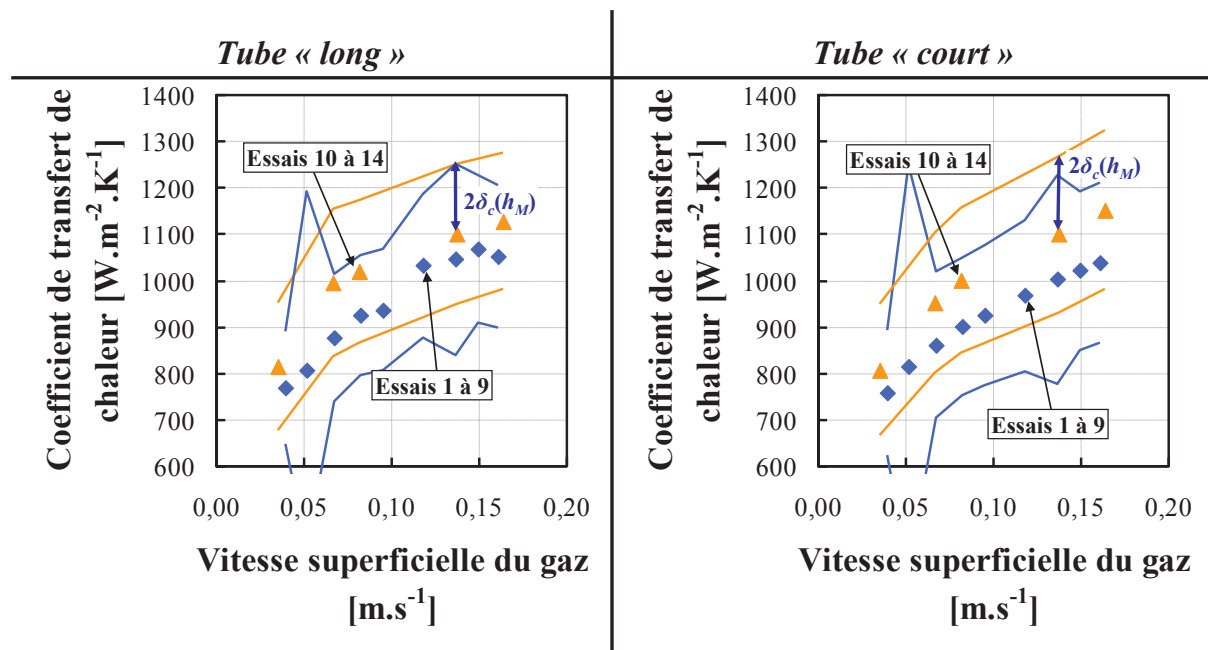
Comme pour les essais 1 à 9, les coefficients de transfert de chaleur calculés sur le tube « long » et sur le tube « court » sont quasiment identiques (cf. Figure III.18).



**Figure III.18** Coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes en U pour les essais 10 à 14

De plus, les coefficients calculés pour les essais 10 à 14 sont systématiquement supérieurs à ceux calculés pour les essais 1 à 9 (cf. Figure III.19). Pour les deux tubes, les écarts entre les deux séries d'essais sont de l'ordre de grandeur des incertitudes de calcul,  $\delta_c(h_M)$ . Ces résultats confirment l'influence de l'orientation du faisceau de tubes sur le transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement. Ces observations sont cohérentes avec celles qui ont été faites pour la première évaluation des coefficients de transfert de chaleur.





**Figure III.19** Influence de l'orientation du faisceau de tubes sur la valeur des coefficients de transfert de chaleur calculés pour chaque tube en U

### III-3.5.1.3 Conclusions

Si les deux types d'évaluation des coefficients de transfert à la paroi externe des tubes donnent des résultats cohérents vis-à-vis de l'influence de l'orientation du faisceau de tube, l'évaluation des coefficients par tube en U donne des résultats plus satisfaisants que l'évaluation par partie droite de tube pour laquelle une incompréhension demeure quant aux résultats obtenus pour le tube « court ». Ces derniers introduisent un doute quant à la fiabilité des mesures de température au retournement des tubes et leur utilisation pour le dépouillement des essais est sujette à caution. L'évaluation d'un coefficient par tube en U est donc à privilégier.

L'orientation du faisceau de tubes, parallèlement à l'axe de la colonne, a une influence sur les valeurs des coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement. Il est probable que cette influence soit la résultante de la déformation du faisceau de tubes. Un tel comportement n'a jamais été rapporté dans la littérature, mais indique que l'écart du faisceau de tubes à un faisceau idéal (i.e. parfaitement droit et symétrique) peut être un paramètre crucial, qui peut avoir un impact sur le transfert de chaleur, au moins dans une colonne de petit diamètre. Une étude systématique du transfert thermique avec des faisceaux excentrés et/ou déformés pourrait fournir des informations intéressantes. Ces conclusions sont à mettre en perspective avec l'étude de *Larachi et al. (2006)*. Ces auteurs ont simulé à l'aide de Fluent®, l'influence de différentes configurations de faisceaux de tubes sur l'hydrodynamique de la colonne. Leurs résultats montrent que l'hydrodynamique classique d'une colonne à bulles sans internes (i.e. ascension des bulles principalement au milieu de la colonne et recirculation de la phase liquide à la paroi) est remise en question pour des configurations particulières.

Ces résultats sont d'autant plus importants que de nombreux auteurs ont étudié le transfert de chaleur dans des colonnes à bulles sans autres internes qu'une sonde de petites dimensions permettant de mesurer localement le transfert de chaleur (*Li et Prakash, 2001, Fazeli et al., 2008*). En particulier, *Li et Prakash (2001)* concluent, à partir de leurs résultats

expérimentaux, sur le meilleur emplacement à choisir pour installer dans la calandre des surfaces d'échange de chaleur. Cette tentative est au moins sujette à caution, à la lumière de l'étude de *Larachi et al. (2006)* et de nos résultats expérimentaux.

Enfin, il semble envisageable, en se basant sur les coefficients de transfert de chaleur calculés pour chaque tube en U, de définir un coefficient moyen de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement. Cette définition présenterait l'avantage de simplifier la caractérisation thermique de la colonne à bulles. La modélisation des résultats expérimentaux a donc été étudiée et le modèle choisi validé numériquement à l'aide de la simulation des profils axiaux de température dans la section d'essai de la boucle HORTHENS.

## III-4 Modélisation et Simulation

### III-4.1 Modélisation des résultats expérimentaux

#### III-4.1.1 Modèle

L'approche choisie pour la modélisation des résultats expérimentaux est celle développée par *Deckwer (1980)*, qui a développé une analyse théorique du transfert de chaleur. Son hypothèse de départ est que le transfert de chaleur dans les colonnes à bulles est essentiellement gouverné par la dissipation visqueuse de l'énergie sous forme de micro-tourbillons. En appliquant la théorie du renouvellement de l'interface, développée par Higbie pour le transfert de matière, au transfert de chaleur, et en la combinant avec la théorie de la turbulence isotrope de Kolmogoroff, *Deckwer (1980)* a obtenu une expression reliant le coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe d'un élément thermiquement actif, à la vitesse superficielle du gaz et aux propriétés physiques de la phase liquide.

$$St = \frac{h_M}{\rho_L \cdot C_{pL} \cdot u_G} = C \cdot (\text{Re} \cdot \text{Fr} \cdot \text{Pr}^2)^{-1/4} \quad (\text{III-12})$$

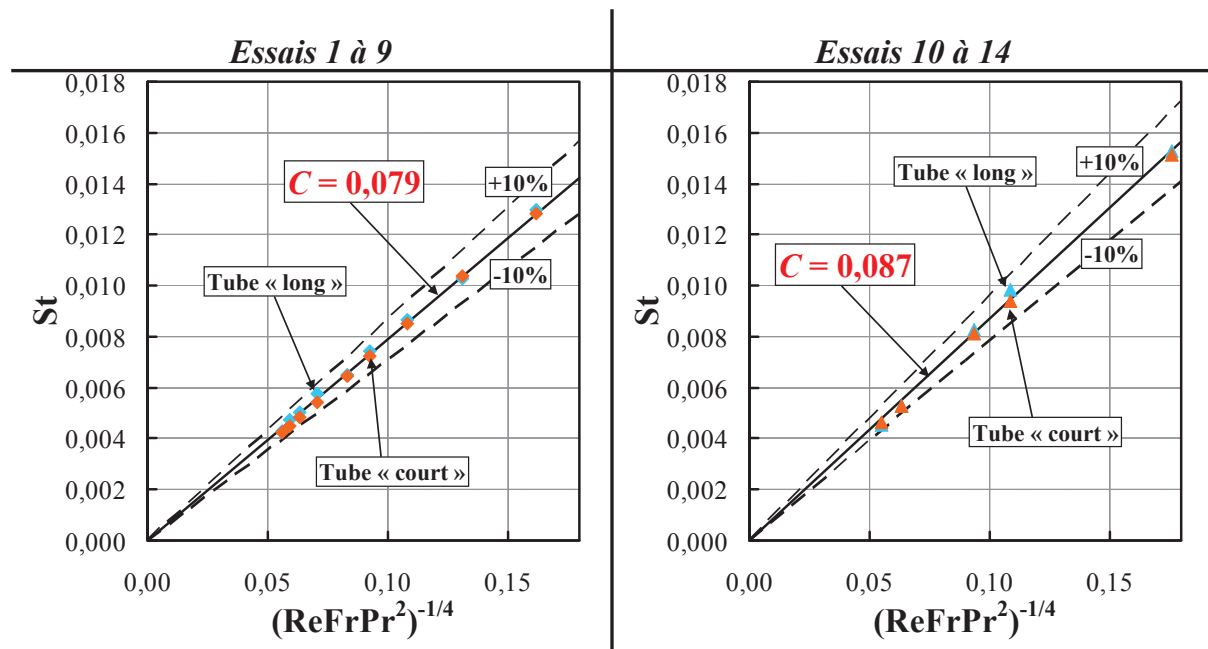
En appliquant l'équation (III-12) à leurs résultats expérimentaux, *Deckwer et al. (1980)* ont déterminé une constante  $C$ , égale à 0,1. Les propriétés physiques des fluides ont été calculées à la température de paroi de l'élément chauffant inclus dans la sonde avec laquelle ils ont réalisés leurs mesures. Enfin, cette corrélation a été développée pour des vitesses superficielles de gaz inférieures à  $0,1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ .

#### III-4.1.2 Applications à la boucle HORTHENS

Le modèle développé par *Deckwer (1980)* a été appliqué aux résultats expérimentaux de la boucle HORTHENS. Ne connaissant pas la température à la paroi des tubes de refroidissement, les propriétés physiques de l'huile Syltherm XLT® ont été calculées à la température du mélange diphasique air-huile à l'entrée de la section d'essai. Les coefficients de transfert évalués pour les tubes en U complets, pour les deux séries d'essais, ont été réécrits sous forme adimensionnels, et les nombres de Stanton tracés en fonction du groupement  $(\text{ReFrPr}^2)^{-1/4}$  (cf. Figure III.20). La fonction de régression linéaire du logiciel EXCEL® a été utilisée pour déterminer la valeur de la constante  $C$  dans chaque cas.

L'ensemble des points expérimentaux est correctement corrélé sur la plage de vitesses superficielles étudiées. Or, les résultats des essais 10 à 14 sont probablement entachés d'une

erreur, puisque les propriétés physiques de la phase liquide ne sont pas connues avec certitude, à cause des différentes pollutions subies par l'huile et la libération continue de particules par la pompe à piston rotatif. La valeur de la constante intègre donc aussi les variations des propriétés physiques du « fluide » circulant dans la calandre, la modélisation reposant sur les propriétés physiques de l'huile Syltherm XLT® pure. Enfin, la valeur de la constante du modèle augmente entre les deux séries d'essais (+10,1 %). Cette augmentation était attendue, puisqu'elle peut refléter l'influence de l'orientation du faisceau sur le transfert de chaleur dans la colonne (cf. Figure III.19).



**Figure III.20** Modélisation des résultats expérimentaux pour les deux séries d'essais

Les constantes obtenues sont plus faibles que celle obtenue par *Deckwer et al. (1980)*. Cependant, la colonne avec laquelle ont travaillé ces auteurs est géométriquement différente de celle de la boucle HORTHENS. Son diamètre était de 0,1 m et la hauteur de suspension liquide-gaz a été variée entre 0,6 et 1 m. De plus, elle était fermée à la phase liquide (des paraffines fondues) et aucun faisceau de tubes n'a été utilisé. L'étude du transfert thermique a été réalisée à l'aide d'une sonde locale de 2,1 cm de diamètre externe, suspendue au centre de la colonne, instrumentée par des thermocouples de paroi.

Pour les essais 1 à 9, et 10 à 14, on peut donc utiliser les corrélations suivantes pour calculer le coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement, respectivement.

$$St = 0,079 \cdot (Re \cdot Fr \cdot Pr^2)^{-1/4} \quad \text{(III-13)}$$

$$St = 0,087 \cdot (Re \cdot Fr \cdot Pr^2)^{-1/4} \quad \text{(III-14)}$$

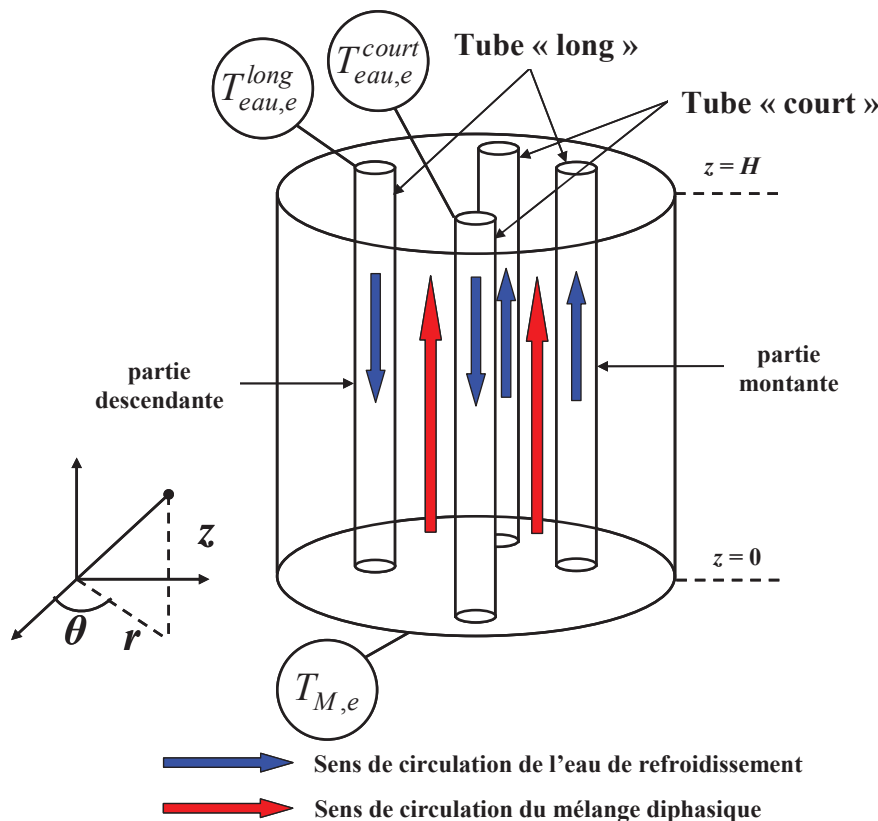
Afin de vérifier leur validité, un modèle thermique numérique a été développé avec le logiciel MATLAB®. À partir des conditions d'entrée dans la section d'essai et du coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes modélisé, il permet de simuler les profils

axiaux de température, aussi bien dans la calandre de la colonne qu'à l'intérieur des tubes de refroidissement.

### III-4.2 Simulation numérique

#### III-4.2.1 Modélisation mathématique

Le modèle sur lequel est basée la simulation numérique de la colonne est un modèle monodimensionnel selon l'axe vertical de la colonne (cf. Figure III.21). Les écoulements dans la calandre et dans les tubes de refroidissements sont modélisés comme étant des écoulements pistons. Par ailleurs, le coefficient d'échange de chaleur à la paroi externe des tubes,  $h_M$ , est le même pour tous les tubes de refroidissement. De plus, les propriétés physiques des fluides sont constantes et calculées à leur température d'entrée respective dans la section modélisée. Enfin, les pertes thermiques par les parois de la colonne sont négligées (hypothèse vérifiée expérimentalement).



**Figure III.21** Modélisation de la colonne pour la simulation numérique

Le problème mathématique employé pour retrouver les profils de températures dans les circuits de la section d'essai est un problème à « conditions aux bornes » (*boundary value problem*), par opposition à un problème à « valeur initiale ». En effet, les températures d'entrée des fluides dans l'installation sont des données du problème. Or, la température d'entrée du mélange air-huile Syltherm XLT® est donnée pour le pied de colonne, tandis que les températures d'entrée de l'eau dans les tubes sont données pour la tête de colonne. La résolution des équations du modèle requiert donc une technique particulière : dans le logiciel MATLAB®, la « routine » *bvp4c*, permet la résolution des problèmes à conditions aux bornes.

L'utilisation de la fonction *byp4c* nécessite d'écrire le modèle sous forme matriciel. Les tubes en U sont donc divisés en deux parties droites, de longueur équivalente, égale à la hauteur des tubes en U (cf. Figure III.21). Cette hauteur est légèrement différente de la hauteur de la section d'essai définie pour le dépouillement des essais (cf. Figure II.6), puisqu'elle inclut le retournement des tubes ( $H = 2,91$  m, au lieu de 2,83 m). Les tubes sont donc modélisés comme la combinaison :

- ✓ d'une partie descendante, dans laquelle l'eau de refroidissement circule dans le sens opposé au sens de circulation du mélange air-huile Syltherm XLT® parcourant la calandre (échangeur à contre-courant),
- ✓ et d'une partie descendante, dans laquelle l'eau de refroidissement circule dans le même sens que le mélange air-huile (échange à cocourant).

Les retournements des tubes sont ramenés à des points. Il est donc nécessaire de rajouter l'égalité des températures au retournement des tubes dans les hypothèses du modèle.

En écrivant les bilans enthalpiques pour la calandre et chaque partie de tube pour une tranche  $dz$  de la colonne, on obtient le système d'équations différentielles suivant, après réarrangement :

$$\frac{dT_{eau,d}^{long}}{dz} = - \left( \frac{K_d^{long} \cdot \pi \cdot D_e}{\dot{m}_{eau}^{long} \cdot Cp_{eau}^{long}} \right) \cdot T_M + \left( \frac{K_d^{long} \cdot \pi \cdot D_e}{\dot{m}_{eau}^{long} \cdot Cp_{eau}^{long}} \right) \cdot T_{eau,d}^{long} \quad (\text{III-15})$$

$$\frac{dT_{eau,d}^{court}}{dz} = - \left( \frac{K_d^{court} \cdot \pi \cdot D_e}{\dot{m}_{eau}^{court} \cdot Cp_{eau}^{court}} \right) \cdot T_M + \left( \frac{K_d^{court} \cdot \pi \cdot D_e}{\dot{m}_{eau}^{court} \cdot Cp_{eau}^{court}} \right) \cdot T_{eau,d}^{court} \quad (\text{III-16})$$

$$\frac{dT_M}{dz} = - \left[ \sum_{\substack{i=d \text{ ou } m \\ j=long \text{ ou } court}} \frac{K_i^j \cdot \pi \cdot D_e}{\dot{m}_{XLT} \cdot Cp_{XLT} + \dot{m}_{air} \cdot Cp_{air}} \right] \cdot T_M + \sum_{\substack{i=d \text{ ou } m \\ j=long \text{ ou } court}} \left[ \left( \frac{K_i^j \cdot \pi \cdot D_e}{\dot{m}_{XLT} \cdot Cp_{XLT} + \dot{m}_{air} \cdot Cp_{air}} \right) \cdot T_{eau,i}^j \right] \quad (\text{III-17})$$

$$\frac{dT_{eau,m}^{long}}{dz} = \left( \frac{K_m^{long} \cdot \pi \cdot D_e}{\dot{m}_{eau}^{long} \cdot Cp_{eau}^{long}} \right) \cdot T_M - \left( \frac{K_m^{long} \cdot \pi \cdot D_e}{\dot{m}_{eau}^{long} \cdot Cp_{eau}^{long}} \right) \cdot T_{eau,m}^{long} \quad (\text{III-18})$$

$$\frac{dT_{eau,m}^{court}}{dz} = \left( \frac{K_m^{court} \cdot \pi \cdot D_e}{\dot{m}_{eau}^{court} \cdot Cp_{eau}^{court}} \right) \cdot T_M - \left( \frac{K_m^{court} \cdot \pi \cdot D_e}{\dot{m}_{eau}^{court} \cdot Cp_{eau}^{court}} \right) \cdot T_{eau,m}^{court} \quad (\text{III-19})$$

Les équations (III-15) et (III-18), et (III-16) et (III-19) modélisent les profils axiaux de température dans le tube « long » et dans le tube « court », respectivement. L'équation (III-17) permet de retrouver le profil de température dans la calandre. Le coefficient global de transfert de chaleur,  $K$ , est calculé à l'aide des équations (II-13), (II-14) (contribution des diverses résistances de transfert), et (III-13) ou (III-14) (transfert côté calandre), selon la série d'essais considérée. Les propriétés physiques des fluides sont déterminées à la température d'entrée des fluides dans la section modélisée.

Les conditions limites du problème sont les températures d'entrée des fluides (en  $z = 0$  pour la température d'entrée du mélange diphasique dans la calandre, et en  $z = H$  pour les températures d'entrée de l'eau dans les tubes descendants, cf. Figure III.21). L'égalité des

températures au retournement des deux tubes fournit les deux dernières conditions limites nécessaires à la résolution mathématique du problème.

Ce modèle a été développé en collaboration avec Charles-Alexis ASSELINEAU, élève-ingénieur de l'Ecole des Mines d'Albi, lors de son stage de fin d'étude au sein de notre laboratoire (Asselineau, 2009).

### III-4.2.2 Comparaison avec les résultats expérimentaux

#### III-4.2.2.1 Essais 1 à 9

Pour la simulation des profils de température des essais 1 à 9, le coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement est calculé à l'aide de l'équation (III-13). Les résultats présentés ici correspondent à l'essai n°4 (cf. Figure III.22). Ils sont représentatifs des résultats obtenus pour les autres essais de la série.

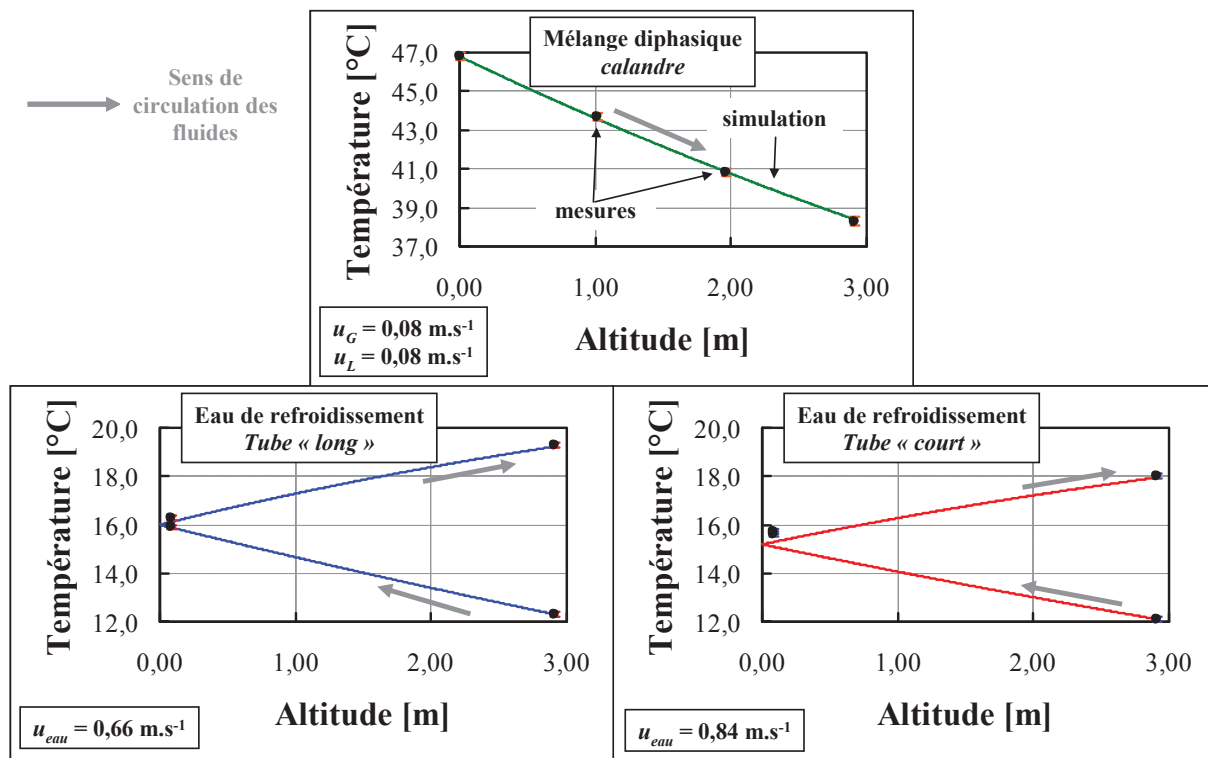


Figure III.22 Simulation numérique vs. Résultats expérimentaux (essai n°4)

La simulation du profil de température dans la calandre (courbe verte) est satisfaisante. Les écarts entre les mesures (en noir) et les points simulés aux altitudes correspondantes sont inférieurs aux incertitudes de mesures des thermocouples (environ  $0,2^\circ\text{C}$ , soit la grosseur des points noirs). L'écart de température simulé entre l'entrée et la sortie de la calandre est de  $8,84^\circ\text{C}$ , contre  $8,94^\circ\text{C}$  pour l'écart de température expérimental.

De même, la simulation du profil de température à l'intérieur du tube « long » (courbe bleue) est correcte. L'écart entre la température expérimentale (point noir en haut à droite de la courbe bleue) et la température simulée à la sortie du tube est inférieure à l'incertitude de mesure du thermocouple (environ  $0,1^\circ\text{C}$ , soit la grosseur du point noir). L'écart de température simulé entre l'entrée et la sortie du tube est de  $6,93^\circ\text{C}$ , contre  $7,07^\circ\text{C}$  pour l'écart de température expérimental. La température située avant le retournement du tube (point noir,

à environ 0,10 m, en bas) est elle aussi correctement simulée. Cependant, la température située après le retournement du tube (point noir, à environ 0,10 m, en haut) n'est pas retrouvée par la simulation. Il existe un écart d'environ  $0,2^{\circ}\text{C}$  (deux fois l'incertitude de mesure du thermocouple) entre le point expérimental et le point simulé.

Si la température de sortie du tube « court » est correctement simulée (il y a seulement  $0,02^{\circ}\text{C}$  d'écart entre le point simulé et la mesure expérimentale), la simulation du profil de température dans le tube « court » (courbe rouge) ne retrouve pas les températures expérimentales avant et après le retournement du tube (points noirs au-dessus de la courbe rouge, à gauche). Cela confirme nos doutes quant à la fiabilité des mesures de températures au retournement des tubes et peut en partie expliquer les écarts obtenus entre les coefficients de transfert de chaleur évalués par partie droite de tube (cf. Figure III.11).

Ces résultats valident les hypothèses faites pour la simulation numérique quant aux écoulements dans la calandre et dans les tubes (i.e. écoulements pistons). Ils valident aussi l'utilisation de l'équation (III-13) comme corrélation pour déterminer le coefficient de transfert de chaleur dans la boucle HORTHENS, avec l'orientation du faisceau de tubes particulière aux essais 1 à 9 et dans les mêmes conditions expérimentales que ces essais. Enfin, la métrologie mise en place est suffisante pour évaluer de manière satisfaisante un coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes en U.

#### III-4.2.2.2 Essais 10 à 14

Pour les essais 10 à 14, le coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement est calculé à l'aide de l'équation (III-14). Les résultats présentés ici correspondent à l'essai n°10 (cf. Figure III.23).

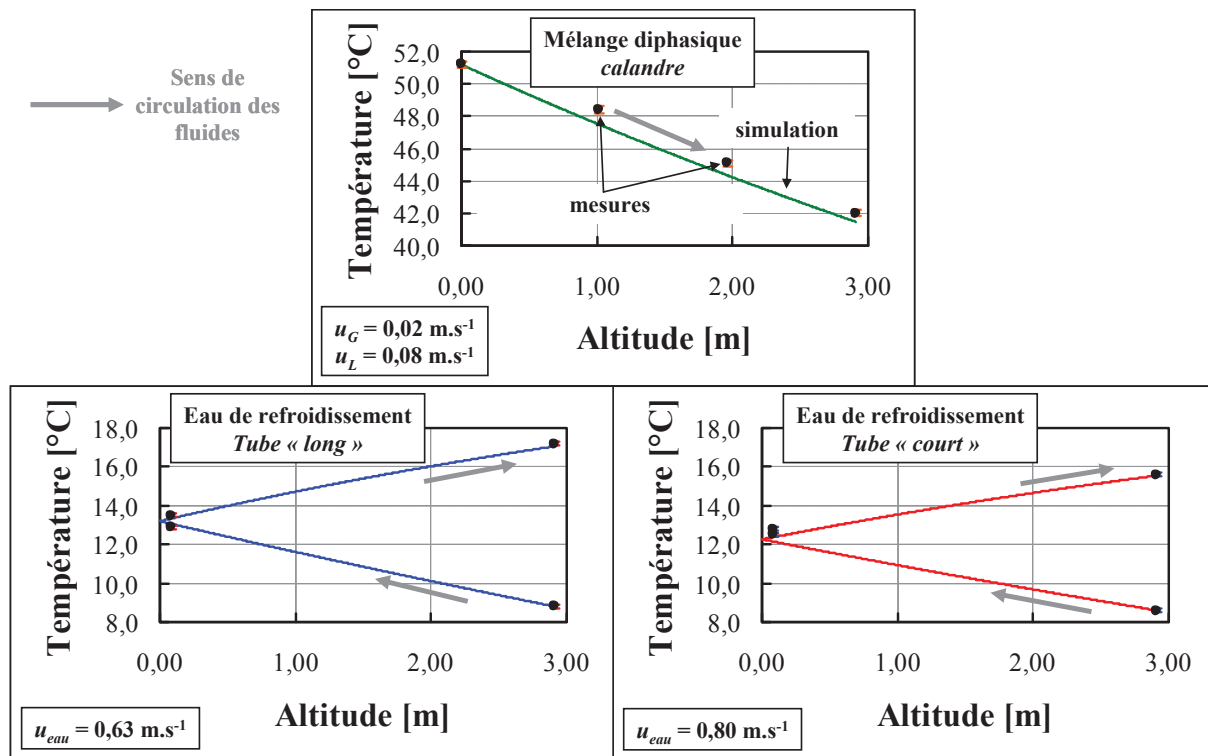


Figure III.23 Simulation numérique vs. Résultats expérimentaux (essai n°10)

L'écart entre les températures simulées et expérimentales varie selon l'essai considéré. Ils diminuent progressivement entre les essais 10 et 14. Pour l'essai n°10, le profil de température dans la calandre est surestimé par la simulation, bien que l'écart avec les températures mesurées reste inférieur à 1°C. Or, les températures de sortie de l'eau des tubes « long » et « court » sont retrouvées avec une relativement bonne précision (environ 0,2°C, soit deux fois l'incertitude de mesure des thermocouples). Pour l'essai n°14, les écarts entre les profils simulés et expérimentaux sont de l'ordre de grandeur des incertitudes de mesures des thermocouples, à l'image des résultats obtenus pour les essais 1 à 9. Cette évolution des écarts entre températures simulées et expérimentales est surprenante, compte-tenu de la bonne corrélation des résultats expérimentaux (cf. Figure III.20, à droite) et des résultats obtenus précédemment.

Cependant, il est rappelé ici qu'il existe un doute quant aux propriétés physiques de l'huile utilisée pour les essais 10 à 14, suite à diverses pollutions d'une part, et une génération continue de particules non identifiées par la pompe à piston rotatif (noircissement de l'huile dans le temps), d'autre part. Or, aussi bien la modélisation des résultats expérimentaux (cf. équation (III-14)) que la simulation numérique se basent sur les propriétés physiques de l'huile Syltherm XLT pure. Les variations de la qualité de la simulation entre les essais 10 à 14 reflètent probablement l'évolution des propriétés physiques de la phase « liquide » dans la calandre, en particulier sa capacité calorifique (puisque le débit massique d'huile est directement mesurée, cf. Chapitre II). Enfin, ces résultats concordent avec l'évolution de l'écart au bilan thermique observée pour les essais 10 à 14 (cf. Figure III.14).

### **III-4.3 Conclusions**

La modélisation des résultats expérimentaux à l'aide du modèle développé par *Deckwer (1980)* donne des résultats satisfaisants pour les deux séries d'essais. Elle permet d'obtenir pour chaque cas, une corrélation donnant un unique coefficient caractérisant le transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement immergés dans la calandre.

L'utilisation de ces corrélations pour simuler numériquement les profils de température dans la calandre et dans les tubes de refroidissement conduit à de faibles écarts entre les profils simulés et les points expérimentaux pour les essais 1 à 9. Ces écarts sont plus importants pour les essais 10 à 14, à cause des incertitudes sur les propriétés physiques de l'huile Syltherm XLT®.

Les résultats des essais 1 à 9 permettent donc de valider la métrologie mise en place pour la mesure des coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes, la corrélation utilisée pour modéliser nos résultats expérimentaux, et le modèle choisi pour modéliser les écoulements dans la calandre et dans les tubes de refroidissement (i.e. écoulement piston).

Les écarts obtenus pour les essais 10 à 14 confirment le rôle prépondérant des propriétés physiques de la phase liquide circulant dans la calandre sur le transfert de chaleur dans les colonnes à bulles, soulignés par plusieurs auteurs (*Hulet et al., 2009*). Cependant, la bonne corrélation des coefficients de transfert expérimentaux, et les résultats obtenus pour les essais 1 à 9, soulignent l'avantage principal de notre méthode de mesure : elle ne dépend pas des propriétés physiques du mélange gaz-liquide ou gaz-liquide circulant dans la calandre.



### III-5 Collaboration

Nos travaux ont donné lieu à une collaboration avec l'équipe du Pr. Faïçal LARACHI, du Département de Génie Chimique de l'Université Laval à Québec (Canada). Cédric LABORDE-BOUTET, post-doctorant au sein de ce département, a utilisé la mécanique des fluides numérique (logiciel FLUENT®) pour développer un modèle en trois dimensions de l'hydrodynamique dans la colonne de la boucle HORTHENS. Le couplage de ce modèle avec les équations de la chaleur a ensuite été étudié. Toutefois, l'écoulement dans les tubes de refroidissement n'a pas été modélisé : la température de l'eau circulant dans les tubes est de fait supposée constante et uniforme sur les tubes ( $T_{eau} = 15^{\circ}\text{C}$ ), ce qui correspond à un débit d'eau dans les tubes infini.

Notre travail a consisté à fournir les résultats expérimentaux servant de point de comparaison aux résultats numériques. Les conditions opératoires sont résumées dans le tableau suivant. Lors de cet essai, l'orientation du faisceau de tubes et la configuration de la boucle HORTHENS correspondait à celles des essais 1 à 9. Les températures d'entrée de l'huile dans la calandre et de l'eau dans les tubes de refroidissement étaient de  $42,9^{\circ}\text{C}$  et de  $8,7^{\circ}\text{C}$ , respectivement.

**Tableau III.9** Conditions opératoires lors de l'essai pour Cédric LABORDE-BOUTET

Essai	$u_G$ (m.s <sup>-1</sup> )	$u_L$ (m.s <sup>-1</sup> )	$u_{eau}$ (m.s <sup>-1</sup> ) tube « long »	$u_{eau}$ (m.s <sup>-1</sup> ) tube « court »
15	0,16	0,08	1,69	1,79

La vitesse d'écoulement de l'eau dans les tubes a été augmentée par rapport aux essais 1 à 9, conduisant à de plus faibles écarts de température entre l'entrée et la sortie des tubes (environ  $3^{\circ}\text{C}$ ). Les vitesses d'écoulement choisies permettent de se rapprocher de l'hypothèse d'une vitesse infinie, tout en conservant des écarts de température entre l'entrée et la sortie des tubes suffisamment grands pour limiter les incertitudes de calcul<sup>7</sup>.

Les coefficients obtenus pour l'essai n°15 sont proches des valeurs obtenues pour l'essai n°9 (cf. Figure III.9). Ils sont corrélés de manière satisfaisante par l'équation (III-13). Ce résultat est intéressant, compte-tenu de l'incertitude de calcul plus importante pour l'essai n°15. Le coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes<sup>8</sup>, calculé par l'équation (III-13), est de  $1074 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ . Pour des conditions opératoires similaires, Cédric LABORDE-BOUTET obtient à partir des profils de température simulés un coefficient global de transfert de chaleur de  $1324 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ . La résistance au transfert de chaleur côté tube de refroidissement étant *a priori* négligeable pour la modélisation, la valeur du coefficient global de transfert de chaleur est proche du coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes (cf. équation II-13). Compte-tenu des incertitudes concernant la description théorique de la turbulence diphasique dans la calandre, l'accord entre l'expérience et la simulation peut être jugé très encourageant.

Les résultats issus de cette collaboration ont été résumés dans l'article de *Laborde-Boutet et al. (2010)*.

<sup>7</sup>  $u_c(h_M) \sim 120 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ , contre  $80 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$  pour l'essai n°9 réalisé aux mêmes vitesses superficielles de liquide et de gaz côté la calandre

<sup>8</sup> Cette valeur est légèrement différente de la valeur publiée dans l'article de *Laborde-Boutet et al. (2010)*, suite à un affinement des dépouillements entre la publication de cet article et la rédaction du mémoire de thèse.

### III-6 Conclusion

La boucle HORTHENS a permis de retrouver les résultats de la littérature concernant la rétention gazeuse globale et le transfert de chaleur dans les colonnes à bulles diphasiques liquide-gaz. La mesure et la caractérisation du transfert de chaleur dans la colonne de la boucle HORTHENS ont reposé sur deux types d'évaluation des coefficients de transfert de chaleur :

- ✓ évaluation d'un coefficient par partie droite de tube (i.e. en négligeant le retournement des tubes),
- ✓ évaluation d'un coefficient par tube en U (i.e. en considérant le tube en U dans sa globalité).

La deuxième évaluation donne des résultats plus proches de nos attentes, à savoir, une équivalence des coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des deux tubes. La première évaluation est problématique. Elle introduit des écarts entre les coefficients calculés sur les parties droites descendantes et montantes du tube « court », qui tendent à remettre en cause la validité des mesures de températures au retournement des tubes.

Les incertitudes de calcul des coefficients de transfert de chaleur ont été estimées à l'aide de la loi de propagation des incertitudes (*Moffat, 1985*). Les incertitudes relatives (i.e.  $\delta_c(h_M)/h_M$ ) sont constantes pour la plupart des essais (environ 8 %). De plus, elles sont fortement dépendantes de la qualité de l'étalonnage des thermocouples et des variations temporelles éventuelles des mesures de température de l'eau circulant dans les tubes, sur lesquelles repose la détermination des coefficients de transfert de chaleur.

En cherchant à comprendre les écarts induits par la première évaluation des coefficients de transfert de chaleur, l'influence de l'orientation du faisceau de tubes, parallèlement à l'axe de la colonne, sur le transfert de chaleur à la paroi des tubes de refroidissement a été mise en évidence. Cette influence résulte probablement de la déformation du faisceau de tubes lors d'un essai antérieur à nos travaux. Un tel résultat n'a jamais été rapporté dans la littérature et appelle des études complémentaires sur l'influence des déformations des faisceaux de tubes sur le transfert thermique dans les colonnes à bulles.

Les coefficients de transfert évalués pour chaque tube en U ont pu être corrélés en utilisant un modèle adapté de celui développé par *Deckwer (1980)*. Les corrélations obtenues ont été implémentées dans la simulation numérique des profils axiaux de température dans l'installation, basée sur un programme écrit sous MATLAB®. Les écarts entre températures simulées et températures expérimentales sont faibles lorsque les propriétés physiques de la phase liquide circulant dans la calandre de la colonne sont connues. Une exception existe cependant : les mesures de la température de l'eau au retournement des tubes ne sont pas toutes retrouvées par la simulation. Cela confirme nos doutes quant à la validité des mesures de température aux retournements des tubes et peut expliquer les écarts observés avec la première méthode d'évaluation des coefficients de transfert. Dans le cas où les propriétés physiques de la phase liquide circulant dans la calandre ne sont pas connues avec précision, les écarts entre températures simulées et expérimentales varient avec l'écart aux propriétés physiques réelles. Ces résultats confirment le rôle prépondérant des propriétés physiques de la phase liquide circulant dans la calandre sur le transfert de chaleur dans les colonnes à bulles (*Hulet et al., 2009*).

Les premiers résultats concernant la mesure et la caractérisation du transfert thermique dans une colonne diphasique ont été présentés oralement par le doctorant, lors du « 8<sup>th</sup> World

*Congress of Chemical Engineering* », à Montréal en août 2009. Ils ont ensuite fait l'objet d'une publication dans le « *Canadian Journal of Chemical Engineering* » (Béliard et al., 2010 ; cf. Annexe G).

Enfin, la collaboration avec l'équipe du Pr. Faïçal LARACHI, du département de Génie Chimique de l'Université Laval à Québec (Canada), a permis d'obtenir un résultat très encourageant quant à l'utilisation de la mécanique des fluides numériques, et son couplage avec les équations du transfert thermique, pour l'étude des colonnes à bulles (*Laborde-Boutet et al., 2010*).

La mesure de coefficients de transfert de chaleur dans une colonne à bulles type « slurry » est l'objet du Chapitre IV.





## Chapitre IV : Etude d'une Colonne à Bulles Type « Slurry »

### IV-1 Hydrodynamique et transfert de chaleur dans les colonnes à bulles type « slurry »

#### IV-1.1 Hydrodynamique

Dans les systèmes triphasiques type « slurry », les particules solides ont une taille moyenne inférieure ou égale à 100  $\mu\text{m}$  (Wang *et al.*, 2007). Si la distribution du gaz est homogène en pied de colonne, le mélange généré par l'ascension des bulles dans la colonne assure une concentration en solide relativement uniforme dans l'ensemble du réacteur (Krishna, 2000). Cependant, lorsque le diamètre de la colonne devient important ( $D_c > 1\text{ m}$ ), des profils axiaux et radiaux de concentration peuvent apparaître en fonction des propriétés physiques du mélange liquide-solide et des conditions opératoires (Rados *et al.*, 2005). Par convention, la concentration en solide,  $\varepsilon_s$ , est définie comme étant la concentration volumique de solide d'un mélange liquide-solide, dans lequel il n'y a aucune bulle de gaz. Si le solide est poreux, le volume des pores, qui sont supposés remplis intégralement de liquide, est considéré comme faisant partie de la phase solide (de Swart, 1996).

L'ajout de particules solides dans les colonnes à bulles fait augmenter la viscosité apparente du mélange liquide-solide et a les mêmes effets que l'augmentation de la viscosité de la phase liquide (Kölbel *et Ralek*, 1980; Rados, 2003). La coalescence des bulles est favorisée, ce qui accélère, voire fait disparaître, la transition entre les régimes homogène et hétérogène (Krishna *et al.*, 1996). Les valeurs de rétention gazeuse sont donc en général plus faibles dans une colonne à bulles triphasiques (Luo *et al.*, 1999). Toutefois, si la concentration volumique en solide reste inférieure à 10 %, la présence de particules a souvent un effet négligeable sur la rétention gazeuse dans la colonne. Alternativement, pour des concentrations volumiques en solide supérieures à 30 %, l'ajout de solide supplémentaire n'a que peu d'effet sur la rétention gazeuse, le gaz parcourant alors la colonne essentiellement sous forme de grosses bulles (Li *et Prakash*, 1997; Krishna, 2000). Enfin, l'influence de la taille des particules a été relativement peu étudiée pour les tailles inférieures ou égales à 100  $\mu\text{m}$ . Elle semble cependant n'être que limitée (Fan *et al.*, 1999; Li *et al.*, 2003).

#### IV-1.2 Transfert thermique

De nombreux auteurs ont étudiés l'influence de l'ajout de particules solides sur le transfert de chaleur dans les colonnes à bulles. Cependant, leurs conclusions sont contradictoires. Certains auteurs rapportent une augmentation du transfert de chaleur avec l'augmentation de la concentration en solide (Kölbel *et Ralek*, 1980; Deckwer *et al.*, 1980; Yang *et al.*, 2000; Fazeli *et al.*, 2008), alors que d'autres ont observé une diminution de la valeur des coefficients de transfert de chaleur (Li *et Prakash*, 1997; Prakash *et al.*, 2001; Li *et al.*, 2003).

Deckwer *et al.* (1980) ont étudié l'influence de la concentration en solide sur le transfert de chaleur dans une colonne de 10 cm de diamètre interne, fermée à la phase liquide. La hauteur de la suspension triphasique a varié entre 60 cm et 1 m. Ils ont utilisé des paraffines fondues comme phase liquide ( $T_M = 143^\circ\text{C}$ ), de l'azote comme phase gazeuse, et de la poudre d'alumine ( $d_s \leq 5\ \mu\text{m}$ ) pour simuler l'ajout d'un catalyseur à base de fer (jusqu'à

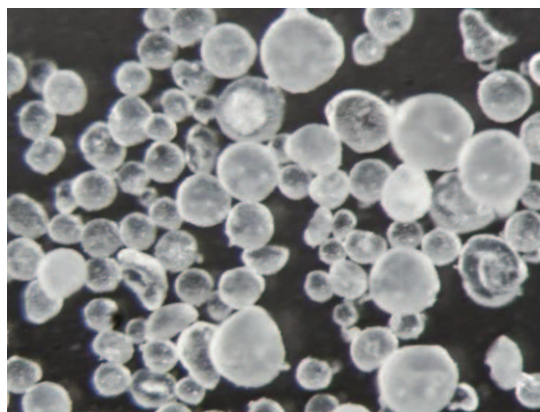
16 % massique). Ils supposent que l'amélioration du transfert de chaleur avec l'augmentation de la concentration en solide provient des mouvements des particules au sein de la phase liquide. Ces derniers auraient pour effet d'augmenter le renouvellement des « paquets » de liquide au niveau des surfaces d'échange. Dans une colonne de même diamètre mais de 1,4 m de haut, *Yang et al. (2000)* ont utilisé de l'huile thermique Paratherm NF®<sup>9</sup> comme phase liquide, de l'azote, et des microbilles de verre ( $d_S = 53 \mu\text{m}$ ) pour des concentrations volumiques allant jusqu'à 35 %. Ces auteurs expliquent que l'augmentation du coefficient de transfert de chaleur avec la concentration en solide provient de l'augmentation de la taille des bulles par coalescence dans les colonnes triphasiques<sup>10</sup>.

*Li et Prakash (1997)* ont étudié une colonne de 0,28 m de diamètre et 4 m de haut, fonctionnant avec le système air-eau-microbilles de verres ( $d_S = 35 \mu\text{m}$ ). Ils ont observé une diminution de la valeur du coefficient de transfert de chaleur avec une augmentation de la concentration volumique en solide allant jusqu'à 40 %. Ils expliquent leurs résultats par le fait que la viscosité apparente du slurry fait diminuer l'intensité de la turbulence dans le sillage des bulles. Ils font donc l'observation inverse de *Yang et al. (2000)*, en s'appuyant sur la même base théorique pour expliquer leurs résultats. Au-delà de la contradiction des résultats expérimentaux, cet exemple illustre la nécessité, encore actuelle, d'étudier le transfert de chaleur dans les colonnes à bulles type « slurry ».

## IV-2 Le solide dans la boucle HORTHENS

### IV-2.1 Choix du solide

Des microbilles d'alumines poreuses PURALOX® SCCa-5/200 ( $\rho_S = 3100 \text{ kg.m}^{-3}$ ) ont été utilisées comme solide pour la mesure de coefficients de transfert de chaleur dans une colonne à bulles type « slurry » (cf. Figure IV.1).



**Figure IV.1** Microbilles d'alumines poreuses utilisées pour la mesure des coefficients de transfert de chaleur dans une colonne à bulles type « slurry » (grossies 300 fois)

Ces particules sont fabriquées par SASOL GERMANY GmbH et peuvent être utilisées comme supports de catalyseur. Leur diamètre moyen est de  $81,4 \mu\text{m}$ . Il a été mesuré au

<sup>9</sup> Les propriétés physiques de l'huile thermique Paratherm NF® sont proches de l'huile Syltherm XLT® utilisée dans cette étude. Sa viscosité est cependant supérieure (19 mPa.s contre 11 mPa.s à 35°C).

<sup>10</sup> Ils s'appuient sur les conclusions de *Kumar et Fan (1994)*, qui ont étudié l'influence de l'injection d'une bulle unique dans un liquide sur le coefficient de transfert de chaleur (mesuré localement). Ces auteurs ont observé une augmentation de la valeur du coefficient de transfert de chaleur instantané dans le sillage de la bulle, au niveau du vortex créé dans la phase liquide par son passage. Plus la bulle est grosse, plus l'intensité de la recirculation de liquide dans le vortex est importante, et plus le transfert de chaleur est favorisé.

laboratoire à l'aide d'une granulomètre laser MALVERN MASTERSIZER®, pour des particules en suspension dans de l'eau distillée. Ces particules sont représentatives de celles envisagées comme support pour les catalyseurs à base de cobalt dans les colonnes industrielles pour le procédé Fischer-Tropsch (*Steynberg et Dry, 2004*).

## IV-2.2 Mise en œuvre

La configuration de la boucle HORTHENS et l'orientation du faisceau de tubes lors des essais triphasiques correspondent à celles des essais 10 à 14 (cf. Chapitre III). En particulier, la pompe à piston rotatif a été utilisée malgré la dégradation qui a été constatée lors des essais 10 à 14 (cf. Chapitre III). Cette dernière s'est poursuivie lors des essais triphasiques, entachant les résultats expérimentaux d'une incertitude quant aux propriétés physiques du mélange liquide-solide.

Par ailleurs, afin d'éviter tout problème lié à la sédimentation des particules dans le circuit de recirculation du slurry, un fonctionnement en continu de l'installation a été choisi. Le débit de recirculation a été maintenu à  $4,3 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  ( $u_{SL} = 0,08 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ), jour et nuit. La vitesse superficielle du gaz a été fixée à  $0,02 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ , la nuit et le week-end, de manière à entretenir une agitation permanente dans la calandre. De même, la chaudière et la circulation d'eau dans les tubes ont été coupées hors des périodes d'essais.

### IV-2.2.1 Chargement

Le chargement des particules d'alumine dans la boucle HORTHENS s'est fait en trois étapes. Dans un premier temps, la boucle a été remplie de 100 L d'huile Syltherm XLT®, représentant une masse d'huile de 85,5 kg. La recirculation d'huile a ensuite été mise en route, ainsi que l'alimentation en air comprimé ( $u_G = 0,02 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ). Les particules d'alumine étant poreuses, leur injection dans le système s'est faite sous forme de mélanges solide-huile Syltherm XLT® concentrés (environ 50 % massique), afin d'éviter un transport des particules en dehors de l'installation<sup>11</sup> et de garder un mélange liquide-solide relativement fluide, facile à mélanger et transvaser.

Une partie de l'huile (ou du slurry) circulant dans la boucle<sup>12</sup> a donc été prélevée, afin de servir à la préparation des mélanges solide-huile. Le solide a été injecté dans la boucle de recirculation de l'huile Syltherm XLT®, par le ciel du réservoir tampon, afin d'assurer un mélange homogène entre les phases liquide et solide, le réservoir étant situé en amont de la pompe, et parce qu'il était facile d'accès. Pour chaque chargement, la procédure est répétée afin de garder une masse d'huile constante dans le système.

### IV-2.2.2 Attrition des particules

Les particules d'alumines ont subi une attrition très importante liée à l'utilisation de la pompe à piston rotatif<sup>13</sup>. Au bout de 24 jours de fonctionnement en continu, correspondant à la durée nécessaire à la réalisation des essais triphasiques, la granulométrie des particules a été sensiblement modifiée (cf. Figure IV.2b). L'évolution de la granulométrie a été *a priori*

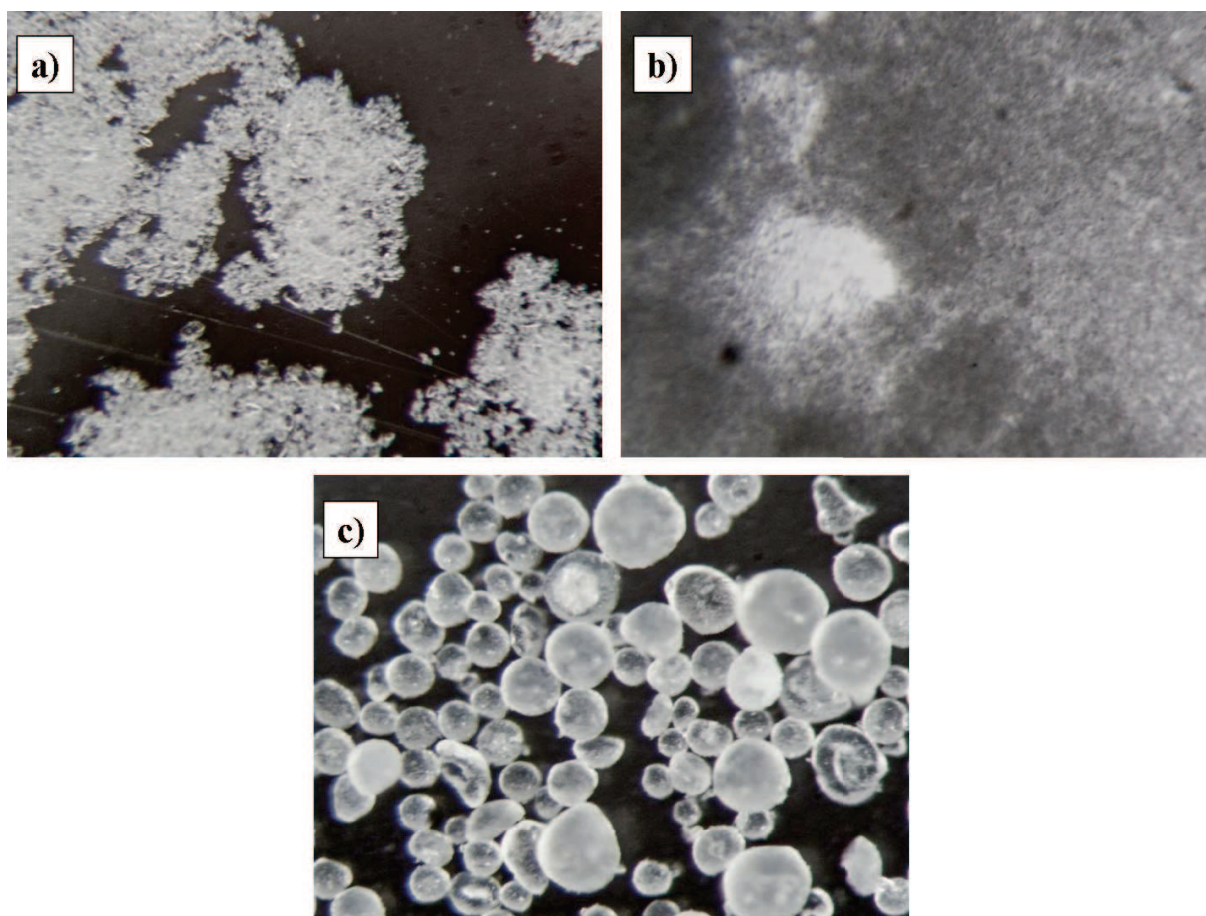
<sup>11</sup> Une partie du gaz sort de l'installation par le ciel du réservoir tampon, à cause d'un sous-dimensionnement des orifices de sortie du gaz en tête de colonne (cf. Chapitre II), et risquerait d'entraîner les particules sèches hors du système.

<sup>12</sup> Environ 6 L, à chaque chargement.

<sup>13</sup> Le choix de cette pompe a pourtant été fait sur proposition du fournisseur en réponse à notre cahier des charges et à nos contraintes budgétaires.



rapide (quelques heures) après l'ajout de particules intactes, comme le laissent supposer des échantillons pris dans les deux heures suivant les chargements en solide (cf. Figure IV.2a).

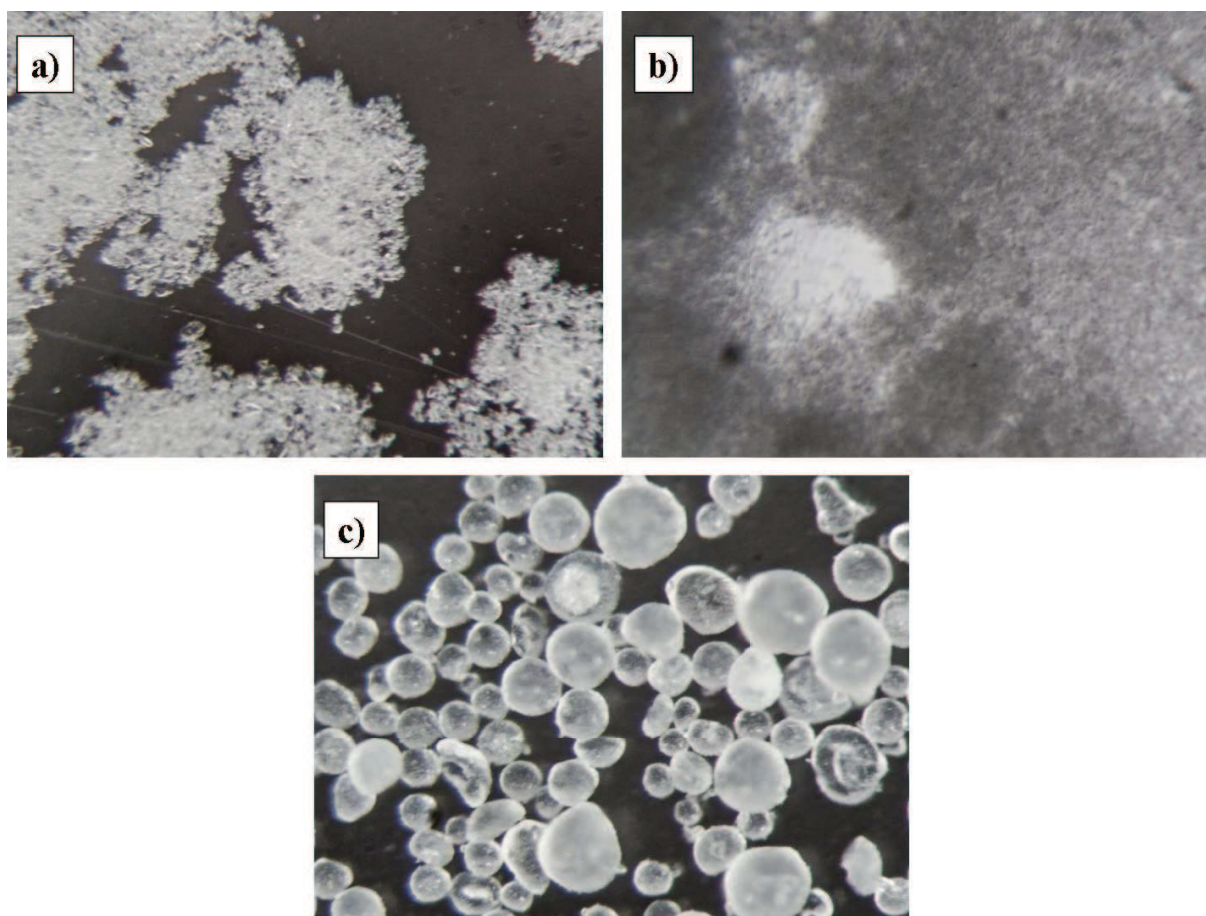


**Figure IV.2** a) Particules d'alumines après 4 jours de fonctionnement en continu de la boucle HORTHEMS, deux heures après l'ajout de nouvelles particules (grossies 300 fois) ; b) Particules d'alumines après 24 jours de fonctionnement en continu de la boucle HORTHEMS (grossies 300 fois) ; c) Granulométrie initiale (particules grossies 300 fois)

L'attrition des particules ne devrait pas avoir d'influence sur l'hydrodynamique de la colonne, puisque la taille des particules n'a qu'un effet limité sur la rétention gazeuse dans les colonnes à bulles triphasiques (*Li et al., 2003*). Cependant, elle a eu pour effet secondaire d'entraîner le bouchage des lignes de pression connectées aux capteurs de pression différentielle. Aucune précaution particulière n'avait été mise en place avant les essais pour enrayer ou limiter ce phénomène (par exemple, en installant des frittés au niveau des prises de pression ou en maintenant une circulation lente d'huile dans les lignes de pression). Une purge des lignes de pression les plus basses a pu être réalisée avec de l'huile Syltherm XLT® propre et l'aide d'une petite pompe, mais le solide est revenu en moins de dix minutes, ce qui était trop rapide pour avoir le temps de purger l'ensemble des lignes et prises de pression. Les mesures des capteurs de pression différentielle n'ont pas pu être exploitées. La détermination de la rétention gazeuse n'a donc pas été possible pour les essais triphasiques.

En revanche, il est possible que l'attrition des particules ait une influence sur le transfert de chaleur. *Li et al. (2003)* ont en effet observé une augmentation du coefficient de transfert de chaleur pour le système air-eau-microbilles de verre, avec la diminution de la taille des particules de 93 à 11  $\mu\text{m}$ . Cependant, ce sont, à notre connaissance, les seuls auteurs

rapide (quelques heures) après l'ajout de particules intactes, comme le laissent supposer des échantillons pris dans les deux heures suivant les chargements en solide (cf. Figure IV.2a).



**Figure IV.2** a) Particules d'alumines après 4 jours de fonctionnement en continu de la boucle HORTHEMS, deux heures après l'ajout de nouvelles particules (grossies 300 fois) ; b) Particules d'alumines après 24 jours de fonctionnement en continu de la boucle HORTHEMS (grossies 300 fois) ; c) Granulométrie initiale (particules grossies 300 fois)

L'attrition des particules ne devrait pas avoir d'influence sur l'hydrodynamique de la colonne, puisque la taille des particules n'a qu'un effet limité sur la rétention gazeuse dans les colonnes à bulles triphasiques (*Li et al., 2003*). Cependant, elle a eu pour effet secondaire d'entraîner le bouchage des lignes de pression connectées aux capteurs de pression différentielle. Aucune précaution particulière n'avait été mise en place avant les essais pour enrayer ou limiter ce phénomène (par exemple, en installant des frittés au niveau des prises de pression ou en maintenant une circulation lente d'huile dans les lignes de pression). Une purge des lignes de pression les plus basses a pu être réalisée avec de l'huile Syltherm XLT® propre et l'aide d'une petite pompe, mais le solide est revenu en moins de dix minutes, ce qui était trop rapide pour avoir le temps de purger l'ensemble des lignes et prises de pression. Les mesures des capteurs de pression différentielle n'ont pas pu être exploitées. La détermination de la rétention gazeuse n'a donc pas été possible pour les essais triphasiques.

En revanche, il est possible que l'attrition des particules ait une influence sur le transfert de chaleur. *Li et al. (2003)* ont en effet observé une augmentation du coefficient de transfert de chaleur pour le système air-eau-microbilles de verre, avec la diminution de la taille des particules de 93 à 11  $\mu\text{m}$ . Cependant, ce sont, à notre connaissance, les seuls auteurs

rapportant une influence de la taille des particules sur le coefficient de transfert de chaleur dans les colonnes à bulles.

## IV-3 Influence de la concentration en solide sur le transfert de chaleur

### IV-3.1 Conditions opératoires

La porosité des particules n'ayant pas été mesurée avec précision, il a été choisi de faire référence à la concentration massique en solide<sup>14</sup>,  $\omega_S$ , pour faciliter la comparaison des essais entre eux. Cependant, en première approximation, la concentration volumique en solide est égale à la concentration massique (cf. Annexe F). L'influence de quatre concentrations en solide a été testée. Les masses de particules correspondantes sont regroupées dans le Tableau IV.1.

**Tableau IV.1** Conditions opératoires pour les essais 16 à 39

Essai	$u_G$ (m.s <sup>-1</sup> )	$u_{SL}$ (m.s <sup>-1</sup> )	$u_{eau}$ (m.s <sup>-1</sup> ), tube « long »	$u_{eau}$ (m.s <sup>-1</sup> ), tube « court »
<b><math>m_S = 3,8</math> kg (<math>\omega_S = 4,3</math> %)</b>				
16	0,03	0,08	0,63	0,80
17	0,09	0,08	0,60	0,76
<b><math>m_S = 13,5</math> kg (<math>\omega_S = 13,6</math> %)</b>				
18	0,03	0,08	0,60	0,76
19	0,04	0,08	0,60	0,76
20	0,06	0,08	0,60	0,76
21	0,07	0,08	0,60	0,76
22	0,08	0,08	0,62	0,79
23	0,12	0,08	0,61	0,78
24	0,15	0,08	0,62	0,78
<b><math>m_S = 19,5</math> kg (<math>\omega_S = 18,8</math> %)</b>				
25	0,03	0,08	0,62	0,79
26	0,05	0,08	0,62	0,79
27	0,06	0,08	0,62	0,79
28	0,07	0,08	0,60	0,77
29	0,08	0,08	0,60	0,76
30	0,10	0,08	0,60	0,76
31	0,12	0,08	0,60	0,76
<b><math>m_S = 23,1</math> kg (<math>\omega_S = 21,3</math> %)</b>				
32	0,03	0,08	0,62	0,78
33	0,04	0,08	0,62	0,78
34	0,05	0,08	0,62	0,79
35	0,07	0,08	0,61	0,77
36	0,08	0,08	0,61	0,77
37	0,09	0,08	0,62	0,78
38	0,10	0,08	0,61	0,78
39	0,12	0,08	0,61	0,78

Comme pour les essais diphasiques, la vitesse superficielle du gaz est la variable opératoire principale de l'étude. Cependant, sa gamme de variation a été réduite lors des deux dernières séries d'essais afin de limiter les pertes en huile dans la calandre. En effet, l'augmentation de la viscosité apparente du slurry avec l'augmentation de la concentration en

<sup>14</sup> Définie comme le rapport entre la masse de solide sec (i.e. le volume des pores est baigné par de l'air) et de la somme des masses d'huile Syltherm XLT® et de solide sec.

solide favorise l'apparition d'un régime pistonnant dans la calandre, en provoquant l'apparition de grosses bulles à de plus faible vitesse superficielle de gaz. De plus, la faible tension superficielle de l'huile Syltherm XLT® favorise la formation d'un brouillard de microgouttelettes d'huile en tête de colonne, lorsque les bulles les plus importantes éclatent au niveau de la zone de désengagement gaz-liquide (cf. Figure II.6). Les microgouttelettes ainsi formées sont entraînées hors de l'installation par le gaz, provoquant des pertes d'huiles conséquentes dans le temps<sup>15</sup>.

### IV-3.2 Coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement

Les coefficients de transfert de chaleur ont été uniquement évalués par tube en U, puisque c'est la méthode qui donne les résultats les moins dispersés (cf. Chapitre III). La Figure IV.3 présente les variations de la valeur des coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes « long » et « court » en fonction de la vitesse superficielle du gaz pour les quatre séries d'essais.

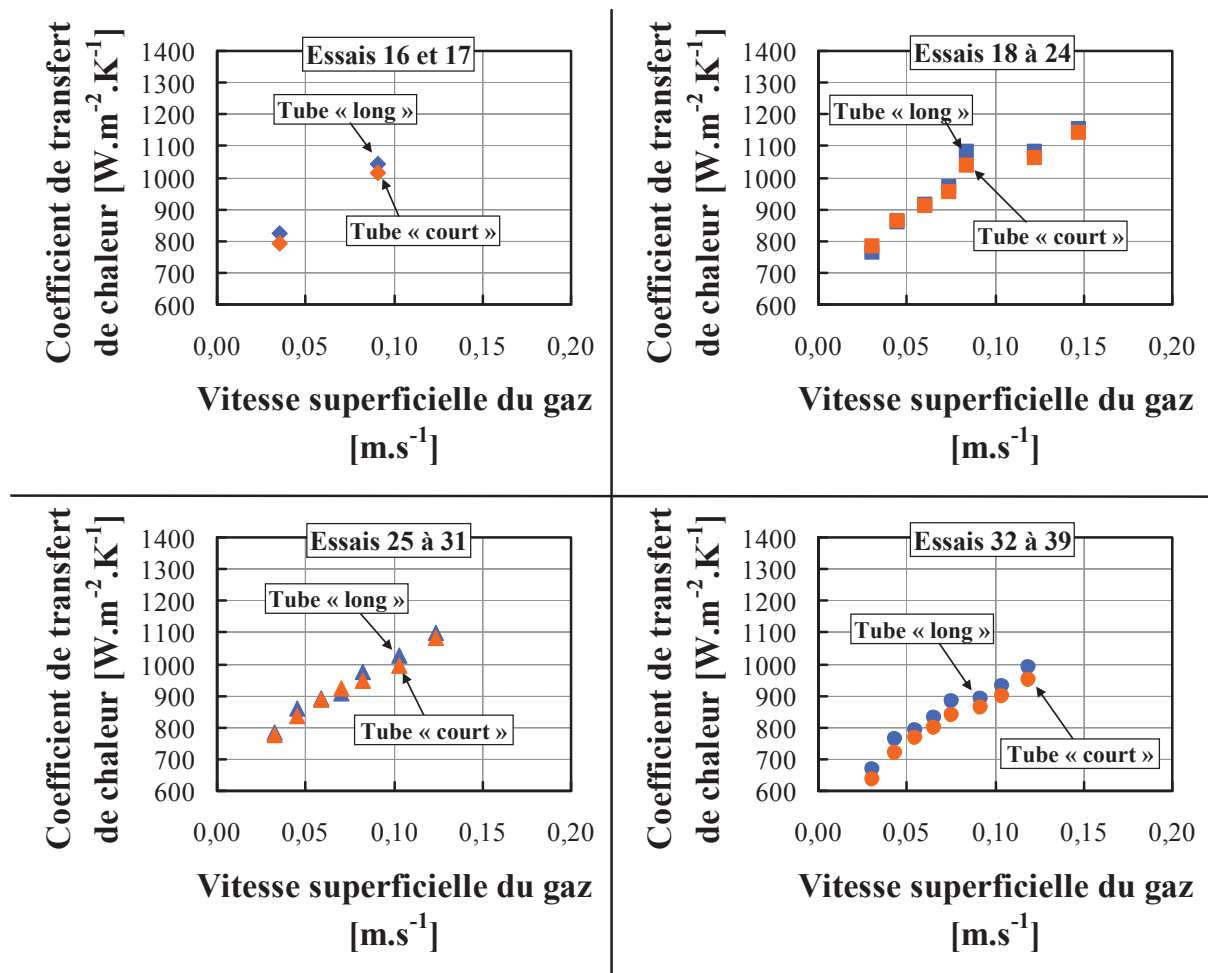
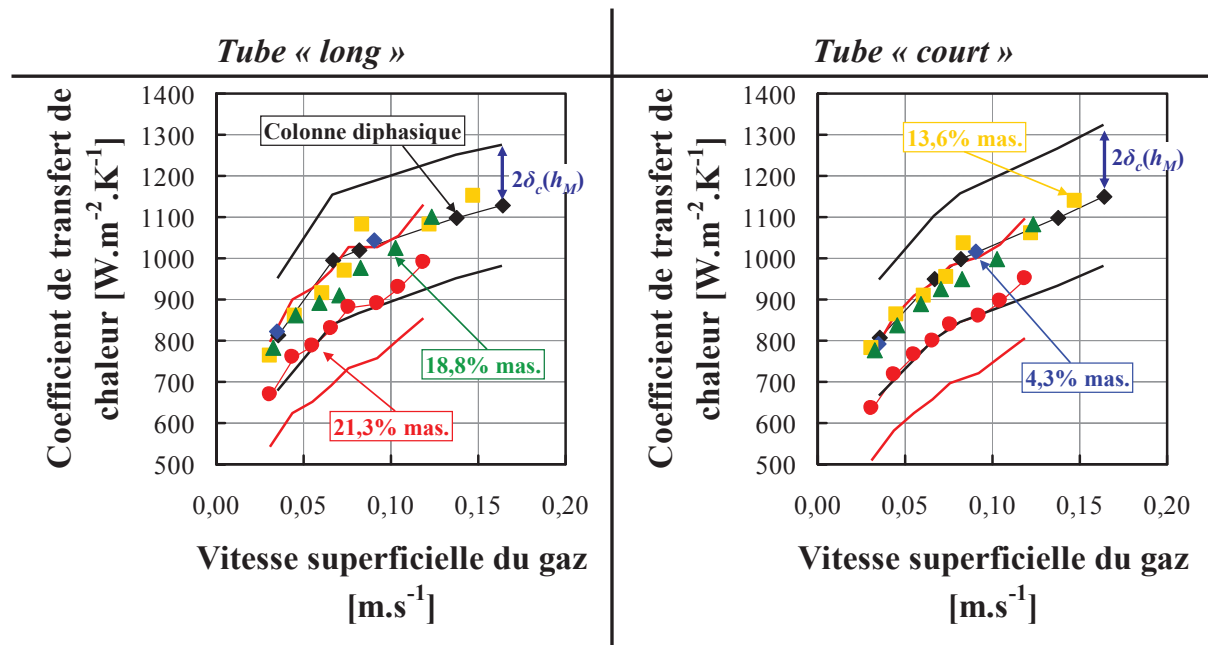


Figure IV.3 Coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement en fonction de la vitesse superficielle du gaz

<sup>15</sup> Estimées entre 10 et 30 L pour les 24 jours de fonctionnement en continu. Ses pertes n'ont pas été quantifiées plus précisément, notamment à cause de la difficulté de séparer l'huile et les particules solides.

Pour chaque série d'essai, les coefficients de transfert de chaleur calculés sur les deux tubes sont quasiment identiques. Ces résultats correspondent aux observations faites lors des essais diphasiques avec le même type d'évaluation (cf. Figure III.9 et Figure III.18). Ils confirment la validité de la métrologie mise en place sur la boucle HORTHENS pour mesurer des coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement dans les colonnes à bulles type « slurry ».

Ces résultats ont été comparés aux essais diphasiques 10 à 14 (cf. Figure IV.4 ; points noirs). Les barres d'incertitudes ont une demie largeur égale à deux fois l'incertitude de calcul,  $\delta_c(h_M)$ , estimée avec la loi de propagation des incertitudes (cf. Chapitre II). L'influence de la concentration en solide sur le transfert de chaleur est limitée, voire inexistante, pour des concentrations massiques inférieures ou égales à 18,8 %. Ce résultat est surprenant, car les variations des coefficients de transfert de chaleur avec la concentration en solide rapportées dans la littérature, bien que contradictoires, sont continues (Deckwer *et al.*, 1980; Li *et al.*, 2003). Au-delà de 18,8 % massique, une diminution d'environ 10 % de la valeur des coefficients de transfert apparaît. Par manque de temps et de microbilles d'alumine supplémentaires, conjugués à la dégradation de la pompe à piston rotatif, la concentration massique en solide n'a pas pu être augmentée de nouveau pour confirmer cette tendance. De plus, compte-tenu de l'évolution dans le temps des propriétés physiques du mélange liquide-solide, liée à la dégradation de la pompe à piston rotatif, et de l'attrition des microbilles d'alumine, il est difficile de conclure avec certitude sur les résultats présentés ici.



**Figure IV.4** Influence de l'augmentation de la concentration massique en solide sur le coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement

#### IV-4 Conclusion

Bien que des problèmes liés à la mise en œuvre de particules solides soient apparus, la métrologie mise en place sur la boucle HORTHENS a permis de mesurer des coefficients de transfert à la paroi externe des tubes de refroidissement dans le cas d'une colonne triphasique gaz-liquide-solide. L'influence de la concentration massique en solide sur le transfert de chaleur est limitée pour des concentrations inférieures ou égales à 18,8 %. Au-delà, la valeur des coefficients de transfert de chaleur diminue.

De tels résultats n'ont jamais été rapportés dans la littérature, les coefficients de transfert de chaleur mesurés variant généralement de manière continue, dans un sens ou dans l'autre, avec l'augmentation de la concentration en solide. Cette différence pose la question de la sensibilité de notre méthode de mesure, vis-à-vis de l'influence de ce paramètre. Des essais complémentaires, dans des conditions opératoires mieux maîtrisées, en particulier avec une pompe qui ne se dégrade pas et qui ne provoque pas une attrition importante des particules, sont cependant nécessaires pour confirmer ces résultats. L'utilisation d'une pompe à membrane doit être envisagée, même si elle est plus coûteuse. Enfin, il serait sans doute intéressant d'étudier l'influence du type de particules sur le transfert de chaleur, en remplaçant les microbilles d'alumine par, par exemple, des microbilles de verre de diamètre équivalent.







## Chapitre V : Conclusions et Perspectives

### V-1 Conclusions

L'utilisation d'une maquette analytique, la boucle HORTHENS (Huile Eau Air THermique EN Slurry), a permis de développer et de valider une technique de mesure et de caractérisation du transfert thermique dans les colonnes à bulles équipées d'un faisceau de tubes de refroidissement en U. La mesure et la caractérisation du transfert thermique dans la colonne de la boucle HORTHENS reposent sur l'évaluation d'un coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe de chaque tube en U immergé dans la calandre de la colonne, à partir des seules mesures de débit des fluides et de leurs températures en entrée et en sortie de la section d'essai. Cette évaluation a donné des résultats conformes à nos attentes et aux données de la littérature, pour le couple diphasique air-huile Syltherm XLT®. L'utilisation des températures de l'eau de refroidissement au retournement des tubes pour la caractérisation thermique de l'installation s'est avérée plus problématique, et à soulever de nombreuses interrogations, dont les réponses manquent encore aujourd'hui.

Par ailleurs, la méthode d'évaluation des coefficients de transfert de chaleur choisie a donné des résultats encourageant pour son utilisation dans les systèmes triphasiques gaz-liquide-solide. Des microbilles d'alumines poreuses ( $d_S = 81,4 \mu\text{m}$ ) ont été ajoutées de manière progressive dans le circuit de recirculation d'huile de la boucle HORTHENS jusqu'à atteindre une concentration massique de 21,3 %. L'augmentation de la concentration en solide n'a pas ou peu eu d'effet sur le transfert thermique jusqu'à 18,8 % massique. Au-delà, la valeur des coefficients de transfert de chaleur diminue d'environ 10 %. Un tel comportement n'a jamais été rapporté dans la littérature, à notre connaissance. Cependant, la dégradation de la pompe de recirculation (indépendamment de la présence des particules de solide) et l'attrition importante des particules (liée au choix d'une mauvaise technologie de pompe) empêchent de conclure sur la qualité de nos résultats et rendent nécessaire des essais complémentaires.

Les incertitudes liées à la détermination des coefficients de transfert de chaleur ont été systématiquement estimées de manière théorique par l'intermédiaire de la loi de propagation des incertitudes (*Moffat, 1985*). Les incertitudes relatives (i.e.  $\delta_c(h_M)/h_M$ ) se sont révélées quasiment constantes pour l'ensemble de nos essais (environ 8 %). L'influence des incertitudes liées aux mesures de température sur l'incertitude finale s'est révélée cruciale, sans que cela n'affecte pour autant la qualité de la détermination des coefficients de transfert de chaleur. Ce résultat traduit une surestimation des incertitudes de mesure. Cette dernière a pour origine l'hypothèse qui a été faite sur l'indépendance des effets des différentes variables opératoires sur le résultat final des calculs. Cette hypothèse est rendue nécessaire en l'absence de toute étude statistique de l'installation, étude qui serait longue et qui n'entraîne pas dans le cadre de nos travaux.

Le faisceau de tubes immergé dans la colonne de la boucle HORTHENS présente une légère déformation (i.e. un tube en U a une forme de banane), résultant d'un incident lors d'un essai antérieur à nos travaux. Or, la position de cette déformation, par rapport à l'axe vertical de la colonne, a probablement une influence sur le transfert de chaleur à la paroi externe des tubes. Une augmentation d'environ 10 % de la valeur des coefficients de transfert de chaleur a été mesurée après rotation de 90° du faisceau de tubes, par rapport à l'axe de la colonne. Un tel résultat n'a jamais été rapporté dans la littérature, à notre connaissance, et appelle des études complémentaires sur l'influence des déformations des faisceaux de tubes sur le

transfert thermique dans les colonnes à bulles, et, plus généralement de l'écart entre la réalité et l'image idéale que l'on s'en fait.

Pour le système diphasique air-huile Syltherm XLT®, les coefficients de transfert de chaleur obtenus ont pu être corrélés en utilisant un modèle adapté de celui de *Deckwer (1980)*. La constante du modèle dépend de la série d'essais considérée, donc probablement de l'orientation du faisceau de tubes dans la colonne. Ces résultats sont encourageants pour l'utilisation de telles corrélations pour développer des outils de dimensionnement de réacteurs industriels. Cependant, des essais complémentaires sont encore nécessaires, notamment dans des colonnes de diamètres supérieurs ou égaux à 1 m.

Les corrélations obtenues ont été employées dans la simulation numérique des profils axiaux de température dans la section d'essai, basée sur un programme développé sous MATLAB®. Les écarts entre températures simulées et températures expérimentales sont faibles lorsque les propriétés physiques de la phase liquide circulant dans la calandre de la colonne sont connues. Une exception existe cependant : les mesures de la température de l'eau au retournement des tubes ne sont pas retrouvées par la simulation. Cela nous a incité à écarter ces mesures pour la caractérisation thermique de l'installation. Par ailleurs, dans le cas où les propriétés physiques de la phase liquide circulant dans la calandre ne sont pas connues avec précision (suite par exemple à une pollution), les écarts entre températures simulées et expérimentales varient avec l'écart aux propriétés physiques réelles. Ces résultats confirment le rôle prépondérant des propriétés physiques de la phase liquide circulant dans la calandre sur le transfert de chaleur dans les colonnes à bulles (*Hulet et al., 2009*).

Enfin, la collaboration avec l'équipe du Pr. Faïçal LARACHI, du département de Génie Chimique de l'Université Laval à Québec (Canada), a permis d'obtenir un résultat très encourageant quant à l'utilisation de la mécanique des fluides numériques, et son couplage avec les équations du transfert thermique, pour l'étude des colonnes à bulles (*Laborde-Boutet et al., 2010*) : en dépit des questions soulevées par le choix d'un modèle de turbulence multi-fluides, l'ordre de grandeur du coefficient de transfert est retrouvé.

## V-2 Perspectives

Dans une deuxième phase de nos travaux, la métrologie validée sur la boucle HORTHENS a été implantée dans la colonne de la boucle SETH (Slurry Echange THermique). La boucle SETH est une unité de géométrie et de fonctionnement jugés représentatifs des colonnes à bulles type « slurry » pour le procédé Fischer-Tropsch (cf. Figure V.1). Le Tableau V.1 compare les dimensions et le mode de fonctionnement d'un réacteur industriel type (données de *Maretto et Krishna (1999)*) à ceux de la boucle SETH.

Le principe de fonctionnement de la boucle SETH est le même que celui de la boucle HORTHENS. La chaudière, permettant de simuler la chaleur dégagée par une réaction exothermique, a une puissance de 600 kW et la pompe recirculation d'huile permet d'obtenir un débit de  $200 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ . La seule différence avec le fonctionnement de la boucle HORTHENS est la circulation en boucle fermée de l'eau de refroidissement entre les tubes immergés dans la calandre et un échangeur de chaleur externe qui permet de contrôler la température d'entrée de l'eau dans les tubes. L'alimentation des tubes de refroidissement se fait par l'intermédiaire de distributeurs, répartissant le débit d'eau de refroidissement de manière *a priori* homogène entre les tubes.

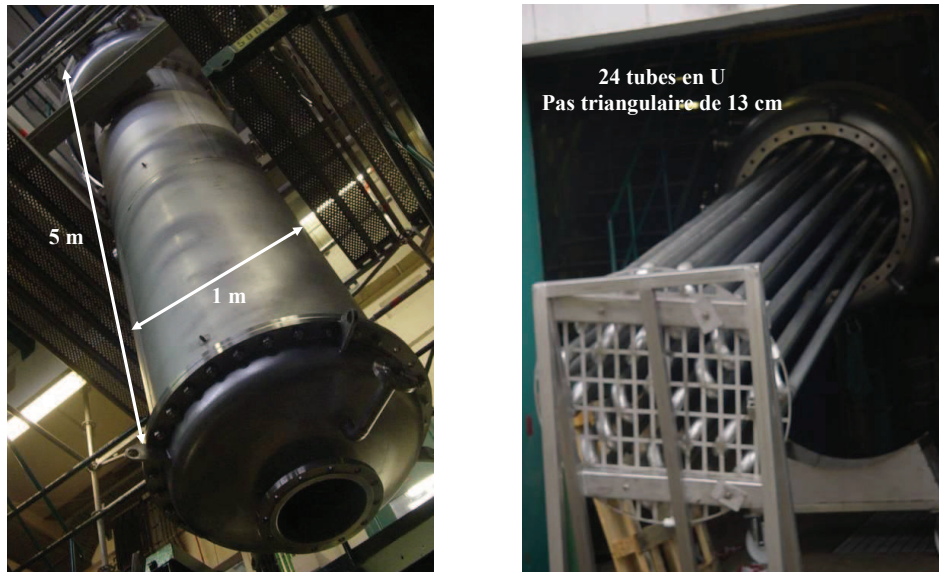


Figure V.1 La boucle SETH

Tableau V.1 Colonne industrielle type vs. SETH

Paramètre	Colonne industrielle <sup>16</sup>	Colonne de taille représentative
Diamètre de la colonne	6-10 m	1 m
Hauteur de la colonne	30-40 m	5 m
Pression opératoire	30-50 bar	$P_{atm}$
Température moyenne dans la calandre	220-250°C	40-80°C
Vitesse superficielle du gaz (en entrée de colonne)	0,20-0,40 m.s <sup>-1</sup>	0,02-0,20 m.s <sup>-1</sup>
Vitesse superficielle du liquide ou du slurry (en entrée de colonne)	-	0,01-0,12 m.s <sup>-1</sup>
Alimentation	Injection de gaz en pied de colonne	Injection de gaz en pied de colonne et recirculation de la phase liquide
Système de refroidissement	5000 à 8000 tubes verticaux ( $D_e = 0,05$ m, pas de 0,15 m)	24 tubes en U ( $D_e = 0,06$ m, pas triangulaire de 0,13 m)
Liquide de refroidissement	Eau sous pression se vaporisant le long des tubes	Eau sans changement de phase
Gaz	« Syngas » (CO + H <sub>2</sub> )	Air comprimé
Phase liquide	Mélange d'hydrocarbures	Huile Syltherm XLT®

La section d'essai mesure 3,4 m de haut. Elle est instrumentée par 150 thermocouples mesurant les températures de paroi externe ainsi que les températures d'entrée et de sortie de l'eau pour quinze tubes de refroidissement sur les vingt-quatre que comporte le faisceau. Neuf thermocouples permettent de mesurer la température du mélange diphasique dans la calandre (trois sections de mesure à des altitudes différentes ; trois thermocouples par section). Ils sont suffisamment longs pour permettre d'établir des profils radiaux de températures sur le diamètre complet.

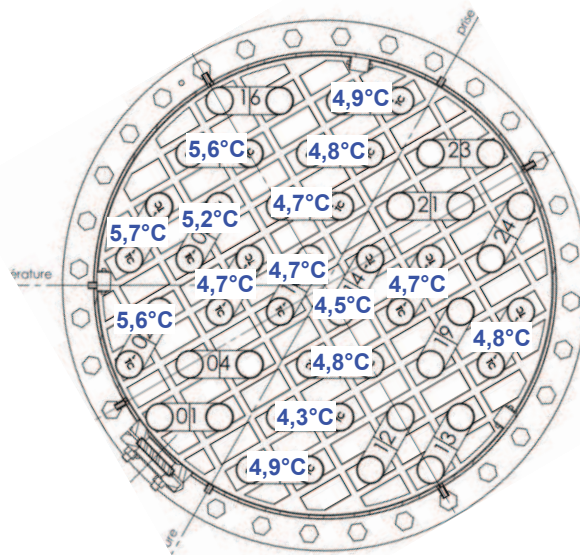
La mesure et la caractérisation du transfert thermique dans la colonne de la boucle SETH se dérouleront en deux étapes. Dans un premier temps, les essais seront réalisés en régime thermique permanent. Comme pour la boucle HORTHEMS, la vitesse superficielle du

<sup>16</sup> Il n'existe que peu de colonne à bulles type « slurry » de taille industrielle. Les informations les concernant ne sont que fragmentaires, le savoir-faire concernant leur dimensionnement et leur mise en œuvre étant généralement gardé par les industriels explorant la faisabilité du procédé au niveau commercial.

gaz sera la principale variable opératoire. Afin d'obtenir des résultats comparables entre les deux boucles, la vitesse superficielle de la phase liquide sera d'abord fixée à  $0,08 \text{ m.s}^{-1}$ . Par la suite, l'influence de la vitesse superficielle de la phase liquide sur le transfert de chaleur dans la colonne sera étudiée, la pompe assurant la recirculation de l'huile Syltherm XLT® étant équipée d'un variateur. Pour chaque essai, les profils radiaux de température dans la calandre seront établis, aux trois altitudes instrumentées par des thermocouples coulissants. À raison d'un essai par jour (durée nécessaire à la mise en conditions de l'installation et à la réalisation des profils radiaux de température), trois semaines d'essais permettront de recueillir des données pour trois vitesses superficielles de liquide et cinq vitesses superficielles différentes. À partir des résultats, on cherchera notamment à savoir si un modèle adapté de celui de *Deckwer (1980)* est encore utilisable pour prédire le transfert de chaleur dans un tel réacteur.

Dans une deuxième étape, une étude en régime thermique transitoire permettra d'étudier la réponse de l'installation à une brusque montée en température sur le circuit d'huile Syltherm XLT®, simulant l'emballement de la réaction de synthèse Fischer-Tropsch.

Malheureusement, la boucle SETH n'a démarré qu'à la mi-juillet 2010 et est toujours en phase de qualification. Cependant, les premiers résultats expérimentaux indiquent que la caractérisation du transfert de chaleur sera plus délicate que sur la boucle HORTHENS. En particulier, les profils de température dans la calandre ne sont plus aussi plats. De plus (ou « en conséquence »), les écarts de température de l'eau entre l'entrée et la sortie des tubes de refroidissement ne sont pas les mêmes partout dans la calandre, alors que les tubes ont tous les mêmes dimensions (cf. Figure V.2). Il est aussi possible que ces écarts résultent d'une mauvaise distribution de l'eau dans les tubes. Ce point n'a pas encore été vérifié. Néanmoins, ces résultats préliminaires justifient l'importance de la caractérisation thermique des colonnes de grand diamètre.



**Figure V.2** *Écarts de température entre l'entrée et la sortie des tubes de refroidissement de la boucle SETH ( $u_L = 0,08 \text{ m.s}^{-1}$ ,  $u_G = 0,02 \text{ m.s}^{-1}$ ,  $u_{eau} = 0,24 \text{ m.s}^{-1}$ ) – Diamètre vu du dessus*





## Annexe A : Liste des Figures

Figure I.1 Schéma représentatif d'une colonne à bulles type « slurry », d'après Krishna (2000)©.....	3
Figure I.2 Représentation qualitative des régimes hydrodynamiques dans une colonne à bulles, d'après Urseanu (2000)©.....	5
Figure I.3 Nombre de tubes de refroidissement en fonction du coefficient moyen de transfert de chaleur entre le mélange triphasique et des tubes de 0,05 m de diamètre externe.....	6
Figure I.4 Stratégie pour l'extrapolation d'une colonne à bulles type « slurry », d'après Krishna et al. (1996)©.....	7
Figure II.1 Exemple de mauvaise fixation d'un thermocouple de paroi.....	12
Figure II.2 Modélisation du transfert de chaleur à travers la paroi du tube de refroidissement.....	13
Figure II.3 Influence des propriétés physiques de la phase liquide circulant dans la calandre sur la résistance au transfert de chaleur.....	19
Figure II.4 Schéma général de la boucle HORTHENS.....	20
Figure II.5 Influence des propriétés physiques de la phase liquide sur la rétention gazeuse, d'après Krishna (2000)©.....	22
Figure II.6 Mesures de température dans la section d'essai.....	28
Figure III.1 Variation de la rétention gazeuse en fonction de la vitesse superficielle du gaz dans la boucle HORTHENS.....	36
Figure III.2 Carte d'écoulement dans les colonnes à bulles diphasiques, d'après Deckwer et al. (1980)©.....	37
Figure III.3 Evolution des températures du mélange diphasique air-huile Syltherm XLT® en fonction du temps et de l'altitude ( $u_G = 0,04 \text{ m.s}^{-1}$ ; $u_L = 0,08 \text{ m.s}^{-1}$ ).....	38
Figure III.4 Profils radiaux de température en fonction de l'altitude dans la colonne ( $u_G = 0,14 \text{ m.s}^{-1}$ ; $u_L = 0,08 \text{ m.s}^{-1}$ ).....	39
Figure III.5 Variations de la température d'entrée de l'eau dans les tubes en fonction du temps au cours d'un essai du 02 juillet 2009 (essai n°2).....	39
Figure III.6 Evolution des écarts de température aux retournements des tubes en fonction de la vitesse superficielle du gaz pour les essais 1 à 9.....	40
Figure III.7 Ecart au bilan thermique en fonction de la vitesse superficielle du gaz (essais 1 à 9).....	41

Figure III.8 Coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des parties droites des tubes de refroidissement.....	42
Figure III.9 Coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes en U.....	43
Figure III.10 Propagation des incertitudes lors du calcul des coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement.....	47
Figure III.11 Incertitudes sur les coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des parties droites de tubes (essais 1 à 9) .....	49
Figure III.12 Incertitudes sur les coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes en U (essais 1 à 9).....	50
Figure III.13 Influence de l'orientation du faisceau de tube, parallèlement à l'axe de la colonne, sur la rétention gazeuse dans la colonne.....	51
Figure III.14 Ecart au bilan thermique en fonction de la vitesse superficielle du gaz (essais 10 à 14).....	52
Figure III.15 Evolution des écarts de température au retournement des tubes avec la vitesse superficielle du gaz pour les essais 10 à 14 .....	53
Figure III.16 Coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des parties droites de tubes pour les essais 10 à 14 .....	53
Figure III.17 Influence de l'orientation du faisceau de tubes sur la valeur des coefficients de transfert de chaleur calculés pour chaque partie droite de tube .....	54
Figure III.18 Coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes en U pour les essais 10 à 14 .....	55
Figure III.19 Influence de l'orientation du faisceau de tubes sur la valeur des coefficients de transfert de chaleur calculés pour chaque tube en U .....	56
Figure III.20 Modélisation des résultats expérimentaux pour les deux séries d'essais .....	58
Figure III.21 Modélisation de la colonne pour la simulation numérique .....	59
Figure III.22 Simulation numérique vs. Résultats expérimentaux (essai n°4) .....	61
Figure III.23 Simulation numérique vs. Résultats expérimentaux (essai n°10) .....	62
Figure IV.1 Microbilles d'alumines poreuses utilisées pour la mesure des coefficients de transfert de chaleur dans une colonne à bulles type « slurry » (grossies 300 fois).....	70
Figure IV.2 a) Particules d'alumines après 4 jours de fonctionnement en continu de la boucle HORTHEMS, deux heures après l'ajout de nouvelles particules (grossies 300 fois) ; b) Particules d'alumines après 24 jours de fonctionnement en continu de la boucle HORTHEMS (grossies 300 fois) ; c) Granulométrie initiale (particules grossies 300 fois) .....	72



---

Figure IV.3 <i>Coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement en fonction de la vitesse superficielle du gaz</i> .....	74
Figure IV.4 <i>Influence de l'augmentation de la concentration massique en solide sur le coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement</i> .....	75
Figure V.1 <i>La boucle SETH</i> .....	81
Figure V.2 <i>Ecarts de température entre l'entrée et la sortie des tubes de refroidissement de la boucle SETH (<math>u_L = 0,08 \text{ m.s}^{-1}</math>, <math>u_G = 0,02 \text{ m.s}^{-1}</math>, <math>u_{eau} = 0,24 \text{ m.s}^{-1}</math>) – Diamètre vu du dessus</i> ..	82
Figure E.1 <i>Dimensions de l'échangeur de chaleur coaxial</i> .....	99
Figure F.1 <i>Dispositif expérimental</i> .....	101
Figure F.2 <i>Concentration volumique vs. Concentration massique en solide</i> .....	102



## Annexe B : Liste des Tableaux

Tableau II.1 <i>Etude de l'influence des propriétés physiques de la phase liquide du fluide circulant dans la calandre sur la résistance au transfert de chaleur</i> .....	19
Tableau II.2 <i>Propriétés physiques de l'eau et l'huile Syltherm XLT® à 40°C et 1 bar</i> .....	21
Tableau II.3 <i>Propriétés physiques à 25°C des fluides utilisés par Krishna (2000)</i> .....	22
Tableau II.4 <i>Gammes d'utilisation et incertitudes d'étalonnage des capteurs de la boucle HORTHENS</i> .....	32
Tableau III.1 <i>Conditions opératoires des essais 1 à 9</i> .....	35
Tableau III.2 <i>Incertitudes de calcul des coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des parties de tubes pour les essais 1 à 9</i> .....	45
Tableau III.3 <i>Incertitudes de mesure pour les essais 1 à 9</i> .....	46
Tableau III.4 <i>Incertitudes de calcul, par partie de tube, pour les essais 1 à 9</i> .....	46
Tableau III.5 <i>Incertitudes de mesure des thermocouples instrumentant les tubes (essai n°1)</i> .....	47
Tableau III.6 <i>Incertitudes de calcul des coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes en U pour les essais 1 à 9</i> .....	48
Tableau III.7 <i>Conditions opératoires des essais 10 à 14</i> .....	51
Tableau III.8 <i>Incertitudes de calcul des coefficients de transfert de chaleur par partie droite de tube pour les essais 10 à 14</i> .....	54
Tableau III.9 <i>Conditions opératoires lors de l'essai pour Cédric LABORDE-BOUTET</i> .....	64
Tableau IV.1 <i>Conditions opératoires pour les essais 16 à 39</i> .....	73
Tableau V.1 <i>Colonne industrielle type vs. SETH</i> .....	81
Tableau D.1 <i>Valeurs souhaitées pour les températures d'entrée et débits des différents fluides dans la boucle HORTHENS</i> .....	95
Tableau E.1 <i>Dimensions des tubes et températures d'entrée dans l'échangeur</i> .....	97
Tableau F.1 <i>Volumes et masses mesurés – Estimation de <math>\varepsilon_S</math> et de <math>\rho_{sol}</math></i> .....	102



## Annexe C : Propriétés Physiques des Fluides en Fonction de la Température

### C-1 Eau liquide ( $P_{atm}$ )

Température [°C]	Masse volumique [kg.m <sup>-3</sup> ]	Capacité calorifique [J.kg <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> ]	Conductivité thermique [W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> ]	Viscosité dynamique [Pa.s]
10	1000	4206	0,584	0,001302
15	999	4198	0,592	0,001150
20	998	4191	0,599	0,001021
25	997	4186	0,607	0,000913
30	996	4182	0,613	0,000820

Source : [www.celsius-process.com](http://www.celsius-process.com)

Dans la gamme de températures donnée ci-dessus, les propriétés physiques de l'eau liquide sont calculées à l'aide des polynômes suivants, obtenus par régression sous EXCEL® :

$$\rho_{eau} [kg.m^{-3}] = 1,002 \times 10^3 - 0,2000 \cdot T(^{\circ}C) - 1,4552 \times 10^{-11} \cdot T^2(^{\circ}C)$$

$$Cp_{eau} [J.kg^{-1}.K^{-1}] = 4,211 \times 10^3 + 1,3333 \cdot T(^{\circ}C) - 2,7667 \times 10^{-1} \cdot T^2(^{\circ}C) + 1,0667 \times 10^{-2} \cdot T^3(^{\circ}C) - 1,3333 \times 10^{-4} \cdot T^4(^{\circ}C)$$

$$\lambda_{eau} [W.m^{-1}.K^{-1}] = 0,5710 + 1,0595 \times 10^{-3} \cdot T(^{\circ}C) + 3,1429 \times 10^{-5} \cdot T^2(^{\circ}C) - 6,6667 \times 10^{-7} \cdot T^3(^{\circ}C)$$

$$\mu_{eau} [Pa.s] = 1,6630 \times 10^{-3} - 3,8500 \times 10^{-5} \cdot T(^{\circ}C) + 1,0667 \times 10^{-7} \cdot T^2(^{\circ}C) + 1,6000 \times 10^{-8} \cdot T^3(^{\circ}C) - 2,6667 \times 10^{-10} \cdot T^4(^{\circ}C)$$

### C-2 Huile Syltherm XLT® ( $P_{atm}$ )

Température [°C]	Masse volumique [kg.m <sup>-3</sup> ]	Capacité calorifique [J.kg <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> ]	Conductivité thermique [W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> ]	Viscosité dynamique [Pa.s]
20	855	1772	0,1108	0,00140
30	845	1793	0,1086	0,00120
40	835	1814	0,1064	0,00100
50	825	1835	0,1042	0,00091
60	814	1856	0,1019	0,00080
70	804	1877	0,0996	0,00070
80	794	1898	0,0973	0,00063
90	783	1919	0,0949	0,00057
100	773	1940	0,0925	0,00051

Source : [www.celsius-process.com](http://www.celsius-process.com)

La masse volumique, la capacité calorifique, et la conductivité thermique de l'huile Syltherm XLT® sont calculées à l'aide des polynômes suivants, obtenus par régression sous EXCEL® et valables entre -100°C et 290°C :

$$\rho_{XLT} [kg.m^{-3}] = 875,84 - 1,0260 \cdot T(^{\circ}C) + 6,6202 \times 10^{-6} \cdot T^2(^{\circ}C) - 1,1294 \times 10^{-7} \cdot T^3(^{\circ}C) + 2,8183 \times 10^{-10} \cdot T^4(^{\circ}C)$$

$$Cp_{XL T} [J.kg^{-1}.K^{-1}] = 1729,3 + 2,1075 \cdot T(^{\circ}C) + 6,9858 \times 10^{-5} \cdot T^2(^{\circ}C) \\ - 8,2729 \times 10^{-7} \cdot T^3(^{\circ}C) + 1,8460 \times 10^{-9} \cdot T^4(^{\circ}C)$$

$$\lambda_{XL T} [W.m^{-1}.K^{-1}] = 0,1150 - 2,0904 \times 10^{-4} \cdot T(^{\circ}C) - 1,7022 \times 10^{-7} \cdot T^2(^{\circ}C) + 1,0794 \times 10^{-10} \cdot T^3(^{\circ}C)$$

La viscosité est calculée à l'aide du polynôme suivant, obtenu par régression sous EXCEL® et valable entre 20°C et 100°C.

$$\mu_{XL T} [Pa.s] = 2,0767 \times 10^{-3} - 4,4182 \times 10^{-5} \cdot T(^{\circ}C) + 6,1512 \times 10^{-7} \cdot T^2(^{\circ}C) \\ - 4,8427 \times 10^{-9} \cdot T^3(^{\circ}C) + 1,5443 \times 10^{-11} \cdot T^4(^{\circ}C)$$

### C-3 Air sec ( $P_{atm}$ )

Les propriétés physiques de l'air comprimé sont calculées à l'aide des polynômes suivants, utilisés couramment au sein de notre laboratoire et obtenus par régression à partir des données expérimentales du CETIAT, entre 0°C et 1000°C :

$$\rho_{air} [kg.m^{-3}] = 1,2868 - 3,9741 \times 10^{-3} \cdot T(^{\circ}C) + 7,7083 \times 10^{-6} \cdot T^2(^{\circ}C) \\ - 7,5517 \times 10^{-9} \cdot T^3(^{\circ}C) + 2,8118 \times 10^{-12} \cdot T^4(^{\circ}C)$$

$$Cp_{air} [J.kg^{-1}.K^{-1}] = 1002,83 + 6,2883 \times 10^{-2} \cdot T(^{\circ}C) + 3,3322 \times 10^{-4} \cdot T^2(^{\circ}C) \\ - 2,1484 \times 10^{-7} \cdot T^3(^{\circ}C)$$

### C-4 Huile Therminol SP® ( $P_{atm}$ )

L'huile Therminol SP® est le fluide thermique circulant, dans la boucle HORTHENS, en boucle fermée entre la chaudière de 27 kW et l'échangeur de chaleur externe permettant de simuler la chaleur dégagée par une réaction exothermique type Fischer-Tropsch dans la calandre de la colonne. Cette huile est fabriquée par SOLUTIA, qui donne les polynômes suivants pour calculer la masse volumique, la capacité calorifique, et la conductivité thermique de l'huile en fonction de la température (pour la gamme -10°C à 335°C).

$$\rho_{SP} [kg.m^{-3}] = 885,597 - 0,689363 \cdot T(^{\circ}C) + 1,9228 \times 10^{-4} \cdot T^2(^{\circ}C) - 8,87642 \times 10^{-7} \cdot T^3(^{\circ}C)$$

$$Cp_{SP} [J.kg^{-1}.K^{-1}] = 1,83369 \times 10^{-3} + 3,6172 \times 10^{-6} \cdot T(^{\circ}C) - 4,94238 \times 10^{-10} \cdot T^2(^{\circ}C) \\ + 7,988115 \times 10^{-13} \cdot T^3(^{\circ}C)$$

$$\lambda_{SP} [W.m^{-1}.K^{-1}] = 0,131281 - 1,14034 \times 10^{-4} \cdot T(^{\circ}C) - 1,49876 \times 10^{-8} \cdot T^2(^{\circ}C) + 1,76622 \times 10^{-11} \cdot T^3(^{\circ}C)$$

La viscosité est calculée à l'aide du polynôme suivant, obtenu, à partir des données fournies par le fournisseur, par régression sous EXCEL® et valable entre 40°C et 150°C.

$$\mu_{SP} [Pa.s] = 6,3499 \times 10^{-2} - 1,9604 \times 10^{-3} \cdot T(^{\circ}C) + 2,4612 \times 10^{-5} \cdot T^2(^{\circ}C) \\ - 1,4118 \times 10^{-7} \cdot T^3(^{\circ}C) + 3,0543 \times 10^{-10} \cdot T^4(^{\circ}C)$$

### C-5 Alumine (25°C, $P_{atm}$ )

Les ordres de grandeur suivants ont été utilisés pour estimer les propriétés physiques des slurries (*Green et Perry, 2007*).

$$\begin{aligned}\rho_{Al_2O_3} &= 3975 \text{ kg.m}^{-3} \\ Cp_{Al_2O_3} &= 765 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1} \\ \lambda_{Al_2O_3} &= 36 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}\end{aligned}$$

### C-6 Slurry ( $P_{atm}$ )

Les propriétés physiques des slurries peuvent être calculées à partir de celles de la phase liquide et du solide<sup>17</sup> qui les composent, avec relations suivantes recommandées par *Wild et Poncin (1996)*.

$$\begin{aligned}\rho_{SL}[\text{kg.m}^{-3}] &= (1 - \varepsilon_S) \cdot \rho_L + \varepsilon_S \cdot \rho_{sol} \\ Cp_{SL}[\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}] &= (1 - \omega_S) \cdot Cp_L + \omega_S \cdot Cp_S \\ \lambda_{SL}[\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}] &= \lambda_L \cdot \frac{2 \cdot \lambda_L + \lambda_S - 2 \cdot \varepsilon_S \cdot (\lambda_L - \lambda_S)}{2 \cdot \lambda_L + \lambda_S + \varepsilon_S \cdot (\lambda_L - \lambda_S)} \\ \mu_{SL}[\text{Pa.s}] &= \mu_L \cdot [1 + 2,5 \cdot \varepsilon_S + 10,05 \cdot \varepsilon_S^2 + 0,00273 \cdot \exp(16,6 \cdot \varepsilon_S)]\end{aligned}$$

<sup>17</sup> La masse volumique à considérer pour le calcul de la masse volumique du slurry est la masse volumique des particules « mouillées »,  $\rho_{sol}$  (cf. Annexe F).





## Annexe D : Estimation de la Hauteur de la Colonne de la Boucle HORTHENS

La hauteur de la colonne de la boucle HORTHENS, décrite dans le Chapitre II, a été estimée à partir des gammes souhaitées pour les vitesses d'écoulement des fluides dans les circuits de l'installation, les températures d'entrée des fluides, et l'écart de température entre l'entrée et la sortie de l'installation pour l'eau circulant dans les tubes (cf. Tableau D.1), en négligeant les pertes thermiques vers l'extérieur et la contribution de l'air. Les écoulements sont supposés être pistons, aussi bien dans la calandre de la colonne, que dans les tubes de refroidissement.

**Tableau D.1** Valeurs souhaitées pour les températures d'entrée et débits des différents fluides dans la boucle HORTHENS

Variable opératoire	Valeur souhaitée
Température d'entrée de l'huile Syltherm XLT®	50°C
Température d'entrée de l'eau dans les tubes	12°C
Vitesse d'entrée de l'huile Syltherm XLT® dans la calandre	0,1 m.s <sup>-1</sup> , soit environ 5,4 m <sup>3</sup> .h <sup>-1</sup>
Vitesse d'écoulement de l'eau dans les tubes de refroidissement	1 m.s <sup>-1</sup> , soit environ 1,4 m <sup>3</sup> .h <sup>-1</sup> (Re = 18630)
Ecart de température entre l'entrée et la sortie des tubes	8°C, soit une puissance d'environ 26454 W récupérée sur les deux tubes en U

**Remarque :** L'écart de température entre l'entrée et la sortie des tubes est imposé par la puissance de la chaudière permettant de simuler la chaleur dégagée par une réaction exothermique type Fischer-Tropsch (i.e. 27 kW).

Les deux tubes de refroidissement utilisés dans l'installation sont en acier inoxydable ( $\lambda_{inox} = 16 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ). Leurs diamètres interne et externe sont égaux à 0,0224 m et 0,0267 m, respectivement.

L'écart de température sur l'huile Syltherm XLT® entre l'entrée et la sortie de la calandre s'obtient en écrivant l'égalité des flux thermiques entre l'huile et l'eau de refroidissement. Les propriétés physiques des fluides sont calculées à leurs températures d'entrée respectives, en utilisant les polynômes donnés dans l'Annexe C.

$$\Delta T_{XLT} = \frac{\dot{m}_{eau} \cdot C_{p_{eau}} \cdot \Delta T_{eau}}{\dot{m}_{XLT} \cdot C_{p_{XLT}}}$$

L'écart de température fixé pour l'eau entre l'entrée et la sortie des tubes de refroidissement donne un écart de 11,7°C sur l'huile Syltherm XLT®. La température de sortie de l'huile Syltherm XLT® est donc égale à 38,3°C. L'**écart de température moyen logarithmique** est alors égal à **28,1°C** pour les deux tubes en U (cf. équation (I-6)).

Le flux thermique total échangé entre les fluides dans la colonne s'écrit, par définition du coefficient global d'échange de chaleur,  $K$ , dans un échangeur de chaleur tubes-calandre<sup>18</sup> :

<sup>18</sup> Les deux tubes en U sont supposés être divisés en deux parties droites de même longueur (i.e. le retournement des tubes est ramené à un point). En conséquence, la surface d'échange externe,  $S_e$ , est égale à quatre fois la surface d'échange externe d'une partie droite de tube.

$$\Phi = \dot{m}_{eau} \cdot C_{p_{eau}} \cdot \Delta T_{eau} = K \cdot S_e \cdot F \cdot \Delta T_{ML} = K \cdot (4 \cdot \pi \cdot D_e \cdot H_{tube}) \cdot F \cdot \Delta T_{ML}$$

Le **coefficient global d'échange de chaleur** est calculé à l'aide des équations (II-13) et (II-14), en supposant que le coefficient d'échange de chaleur entre l'huile Syltherm XLT® circulant dans la calandre et la paroi externe des tubes de refroidissement est égal à  $1\,000 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$  (ordre de grandeur généralement accepté pour les colonnes à bulles type « slurry »). Il est égal à  **$690 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$** . Le **facteur correctif de l'écart de température moyen logarithmique**,  $F$ , est supposé égal à **1** (i.e. l'influence du sens d'écoulement de l'eau dans le tube en U relativement à l'écoulement de l'huile dans la calandre est négligée ; cf. équation (II-9)).

La longueur de tube,  $H_{tube}$ , nécessaire pour échanger environ 27 kW entre l'huile Syltherm XLT® et l'eau de refroidissement est alors donnée par l'équation suivante.

$$H_{tube} = \frac{\dot{m}_{eau} \cdot C_{p_{eau}} \cdot \Delta T_{eau}}{K \cdot \Delta T_{ML} \cdot (4 \cdot \pi \cdot D_e)}$$

En première approximation, la hauteur de la colonne à bulles,  $H_c$ , est égale à la longueur de tube nécessaire pour assurer l'échange de chaleur, soit environ 4,1 m. Cependant, pour tenir compte de la hauteur disponible sous le pont roulant<sup>19</sup>, cette hauteur a été ramenée à **3,8 m**.

<sup>19</sup> Le pont roulant permet la mise en place de la colonne sur la boucle HORTHENS, ainsi que l'insertion et le maintien du faisceau de tubes dans la calandre.

## Annexe E : Dimensionnement de l'Échangeur Coaxial Cintré

Dans l'échangeur coaxial cintré, l'huile Syltherm XLT® (ou le slurry) circulera dans le tube central de l'échangeur, à contre-courant avec l'huile Therminol SP® provenant de la chaudière de 27 kW (cf. Chapitre II), qui circulera dans l'espace annulaire entre les deux tubes coaxiaux. Ce choix a été fait afin de minimiser les risques de bouchage liés à la présence des particules dans l'écoulement lors de l'utilisation de slurries.

Pour le dimensionnement de l'échangeur, nous avons choisi de maintenir le même débit de circulation et les mêmes températures en entrée et en sortie d'échangeur pour l'huile Syltherm XLT® (ou le slurry), que lors des essais 1 à 9 (cf. Chapitre III), à savoir 35°C et 50°C, respectivement. La température d'entrée de l'huile Therminol SP® dans l'échangeur<sup>20</sup> a été fixée à 100°C. Le débit d'huile dans la chaudière est constant et a été estimé<sup>21</sup> à 3,7 m<sup>3</sup>.h<sup>-1</sup>. Le Tableau E.1 récapitule les dimensions des tubes utilisés pour réaliser l'échangeur coaxial, ainsi que les températures d'entrée et les débits des fluides.

**Tableau E.1** Dimensions des tubes et températures d'entrée dans l'échangeur

Paramètre	Unité	Valeur
Diamètre interne du tube central	m	0,0269
Diamètre externe du tube central	m	0,0321
Diamètre interne du tube extérieur	m	0,0424
Diamètre hydraulique de la section annulaire	m	0,0103
Température d'entrée de l'huile Syltherm XLT®	°C	35
Température d'entrée de l'huile Therminol SP®	°C	100
Débit d'huile Syltherm XLT®	m <sup>3</sup> .h <sup>-1</sup>	4,3
Débit d'huile Therminol SP®	m <sup>3</sup> .h <sup>-1</sup>	3,7

### E-1 Ecart de température moyen logarithmique

Le calcul de l'écart de température moyen logarithmique (cf. équation (II-6)) nécessite la connaissance des températures de sorties des fluides. Elles sont calculées en utilisant l'équation suivante. Les propriétés physiques des fluides sont calculées à leurs températures d'entrée dans l'échangeur, à l'aide des polynômes de l'Annexe C. En négligeant les pertes thermiques, le flux thermique,  $\Phi$ , est égal à 27 kW, soit la puissance de la chaudière.

$$\Phi = \dot{m}_{XLT} \cdot C_{p_{XLT}} \cdot \Delta T_{XLT} = \dot{m}_{SP} \cdot C_{p_{SP}} \cdot \Delta T_{SP}$$

La température de l'huile Therminol SP® en sortie d'échangeur est alors égale à 85,3°C ; celle de l'huile Syltherm XLT® est égale à 49,7°C. L'**écart de température moyen logarithmique** est donc égal à **50,3°C**.

### E-2 Coefficient global de transfert de chaleur

Le coefficient global de transfert de chaleur est calculé à l'aide de deux équations similaires aux équations (II-13) et (II-14). Le coefficient de transfert de chaleur dans l'espace annulaire,  $h_{SP}$ , et le coefficient de transfert de chaleur dans le tube central,  $h_{XLT}$ , remplacent

<sup>20</sup> Elle correspond à la température de l'huile Therminol SP® en sortie de chaudière.

<sup>21</sup> En écrivant l'égalité des flux thermiques entre l'huile Syltherm XLT® et l'huile Therminol SP® pour les essais 1 à 9.

$h_{M,d}$  et  $h_{eau,d}$  dans l'équation (II-13), respectivement. Les diamètres interne et externe de tube à considérer sont ceux du tube central de l'échangeur, de manière à ce que la paroi externe du tube central soit la surface d'échange de référence.

Le coefficient d'échange dans le tube central,  $h_{XLT}$ , est calculé à l'aide de l'équation (II-14), en utilisant les propriétés physiques de l'huile Syltherm XLT® et le diamètre interne du tube central comme grandeur caractéristique. Il est égal à **1601 W.m<sup>-2</sup>.K<sup>-1</sup>**.

Le coefficient d'échange dans l'espace annulaire est calculé à l'aide de l'équation suivante (LETh, 1991).

$$Nu_{annulaire} = \frac{h_{SP} \cdot D_{i,ext}}{\lambda_{SP}} = 0,0243 \cdot Re^{0,8} \cdot Pr^{0,3} \cdot 0,86 \cdot \left( \frac{D_{e,cent}}{D_{i,ext}} \right)$$

$D_{i,ext}$  représente le diamètre interne du tube extérieur de l'échangeur. La vitesse d'écoulement de l'huile Therminol SP® et le nombre de Reynolds sont calculés en utilisant le diamètre hydraulique de l'espace annulaire comme grandeur caractéristique (cf. Tableau E.1). L'exposant du nombre de Prandtl est différent de l'exposant utilisé dans l'équation (II-14), car l'huile Therminol SP® se refroidit dans l'échangeur (Incropera et de Witt, 1990). Le coefficient d'échange de chaleur  $h_{SP}$  est égal à **746 W.m<sup>-2</sup>.K<sup>-1</sup>**.

Le coefficient global de transfert de chaleur entre l'huile Therminol SP® et l'huile Syltherm XLT®,  $K$ , est alors égal à **442 W.m<sup>-2</sup>.K<sup>-1</sup>**.

### E-3 Longueur nécessaire pour l'échange

La longueur,  $L$ , nécessaire pour réaliser l'échange du flux thermique,  $\Phi$ , entre les deux huiles s'obtient à l'aide de l'équation suivante :

$$\Phi = K \cdot S_e \cdot \Delta T_{ML} = K \cdot (\pi \cdot D_e \cdot L) \cdot \Delta T_{ML} \text{ soit } L = \frac{\Phi}{K \cdot (\pi \cdot D_{e,cent}) \cdot \Delta T_{ML}}$$

$D_{e,cent}$  représente le diamètre externe du tube central (cf. Tableau E.1). En utilisant les valeurs calculées pour le coefficient global d'échange de chaleur et l'écart de température moyen logarithmique, la **longueur nécessaire** est donc égale à **12,0 m**.

### E-4 Influence de l'utilisation d'un slurry

L'influence de l'utilisation d'un slurry de microbilles d'alumine poreuses à la place de l'huile Syltherm XLT® dans le tube central de l'échangeur a été étudiée. Les propriétés physiques de l'huile ont été remplacées dans les calculs par celles du slurry (cf. Annexe C). Les concentrations massique et volumique, similaires en première approximation (cf. Annexe F), ont été prises égales à 40 %. Enfin, la masse volumique des particules « mouillées » a été estimée à 1800 kg.m<sup>-3</sup> (cf. Annexe F).

La longueur nécessaire pour l'échange est de **11,5 m**. La différence par rapport au cas où de l'huile Syltherm XLT® est utilisée est donc faible.

## E-5 Conclusion

Cet échangeur a été réalisé en interne au CEA Grenoble. Pour des raisons pratiques, la longueur de l'échangeur a été fixée à **12 m**. Les deux tubes ont été cintrés en **spires de 55 cm** de diamètre pour limiter son encombrement, soit un total de **7 spires**. Les dimensions d'une spire sont données dans la figure ci-dessous.



Figure E.1 Dimensions de l'échangeur de chaleur coaxial



## Annexe F : Estimation de la Concentration Volumique en Solide

Il est rappelé ici que, par convention, la concentration en solide dans une colonne,  $\varepsilon_s$ , est définie comme étant la concentration volumique de solide d'un mélange liquide-solide, dans lequel il n'y a aucune bulle de gaz. Si le solide est poreux, le volume des pores, qui sont supposés remplis intégralement de liquide, est considéré comme faisant partie de la phase solide. Ne disposant pas de mesure précise de la porosité des particules d'alumine PURALOX® SCCa-5/200, nous avons cherché à obtenir une relation liant la concentration volumique ainsi définie et la concentration massique (i.e. rapport entre la masse d'alumine sèche et la somme des masses d'huile Syltherm XLT® et de solide sec), à laquelle nous avons facilement accès.

Pour ce faire, nous avons utilisé une balance de précision et une éprouvette graduée de 300 mL (cf. Figure F.1). Nous avons progressivement ajouté des quantités connues,  $m_S$ , de microbilles d'alumine sèches à un volume connu d'huile Syltherm XLT®,  $V_{XLT}$ , de masse  $m_{XLT}$ . À chaque étape, les particules ont été mélangées manuellement à l'huile, de manière à s'assurer que les pores des particules soient remplis de liquide. Une fois les particules sédimentées, le volume total du mélange liquide-solide,  $V_{total}$ , a été relevé. Les volumes et masses mesurés sont recensés dans le Tableau F.1.

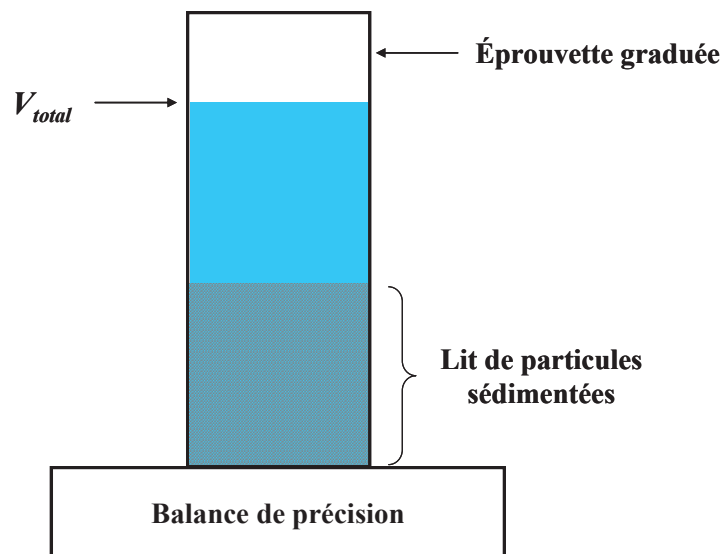


Figure F.1 Dispositif expérimental

Le volume d'huile Syltherm XLT® baignant le volume des pores des particules,  $V_{porosité}$ , est estimé à l'aide de la masse de solide ajouté et du volume moyen des pores, donnée fournie par le fournisseur des microbilles d'alumines ( $V_{pores} = 0,53 \text{ mL.g}^{-1}$ ).

$$V_{porosité} = m_S \cdot V_{pores}$$

Connaissant le volume total du mélange liquide-solide, nous sommes alors en mesure de déterminer le volume occupé par les squelettes des particules et l'huile Syltherm XLT® baignant leurs pores,  $V_{sol}$ .

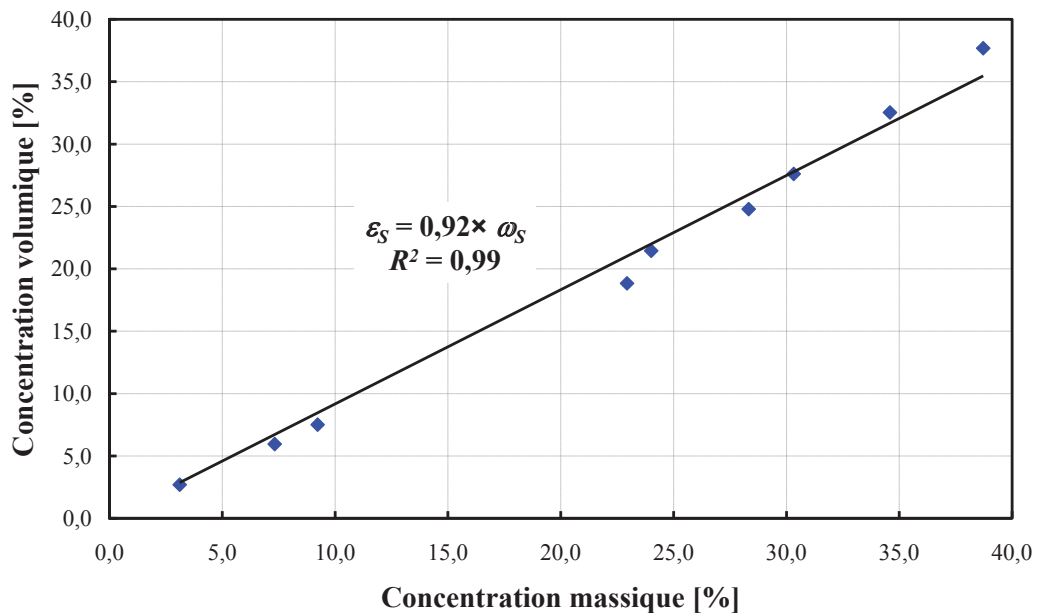
$$V_{sol} = V_{total} - (V_{XLT} - V_{porosité})$$

La concentration volumique en particules,  $\varepsilon_s$ , peut alors être estimée par le rapport entre les volumes  $V_{sol}$  et  $V_{total}$ . Les résultats de nos estimations sont recensés dans le Tableau F.1.

**Tableau F.1** Volumes et masses mesurés – Estimation de  $\varepsilon_s$  et de  $\rho_{sol}$

Essai	$V_{XLT}$ [mL]	$m_{XLT}$ [g]	$m_s$ [g]	$\omega_s$ [%]	$V_{porosité}$ [mL]	$V_{total}$ [mL]	$V_{sol}$ [mL]	$\varepsilon_s$ [%]	$\rho_{sol}$ [kg.m <sup>-3</sup> ]
a	160,0	136,7	4,4	3,1	2,3	162,0	4,4	2,7	1465
b	160,0	136,7	10,8	7,3	5,7	164,0	9,8	5,9	1608
c	160,0	136,7	13,9	9,2	7,4	165,0	12,4	7,5	1629
d	233,6	199,6	59,4	22,9	31,5	249,0	46,9	18,8	1840
e	110,0	94,0	29,7	24,0	15,7	120,0	25,7	21,5	1676
f	175,9	150,3	59,4	28,3	31,5	192,0	47,6	24,8	1813
g	110,0	94,0	40,9	30,3	21,7	122,0	33,7	27,6	1765
h	110,0	94,0	49,7	34,6	26,3	124,0	40,3	32,5	1790
i	110,0	94,0	59,4	38,7	31,5	126,0	47,5	37,7	1818

Le tracé des estimations de la concentration volumique en solide en fonction des concentrations massiques permet de conclure qu'en première approximation les deux concentrations sont égales (cf. Figure F.2).



**Figure F.2** Concentration volumique vs. Concentration massique en solide

### Estimation de la masse volumique des particules « mouillées »

La masse volumique des particules « mouillées »,  $\rho_{sol}$ , est la masse volumique des particules, dont les pores sont baignés par la phase liquide. Elle a été estimée pour les essais *a* à *i*, à l'aide de la formule suivante (cf. Tableau F.1).

$$\rho_{sol} = \frac{V_{porosité}}{V_{sol}} \cdot \rho_{XLT} + \frac{m_s / \rho_s}{V_{sol}} \cdot \rho_s$$



## Annexe G : Article publié dans le Canadian Journal of Chemical Engineering

L'article de *Béliard et al. (2010)* présente les questions apparues lors du dépouillement des premiers essais réalisés sur la boucle HORTHENS avec le système air-huile Syltherm XLT® (cf. Chapitre III, essais 1 à 9). Les notations « Tube 1 » et « Tube 2 » de l'article font référence au tube « long » et au tube « court », respectivement. Cependant, depuis la création de l'article, certains points ont été modifiés dans le traitement des données expérimentales.

La section d'essai considérée dans l'article inclut les thermocouples mesurant la température de l'eau de refroidissement après séparation du débit d'alimentation entre les deux tubes en U et à la sortie de l'installation (cf. Chapitre II, Figure II.6, thermocouples A et F, respectivement). Pour pouvoir utiliser les mesures de ces thermocouples pour le dépouillement des essais, il est alors nécessaire de faire l'hypothèse que les échanges à la paroi externe tubes sont négligeables dans la zone de désengagement et au-dessus de la bride de maintien des tubes (cf. Figure II.6). Or, cette hypothèse n'a pas toujours été vérifiée expérimentalement, les températures mesurées par les thermocouples B et E (cf. Figure II.6) pouvant être significativement différentes de celles des thermocouples A et F. En conséquence, il a été choisi, pour la rédaction du mémoire, de ne considérer que les surfaces d'échange qui sont complètement immergées dans la calandre de la colonne (cf. Figure II.4).

Dans l'article, les vitesses superficielles de gaz sont données dans les conditions normales de pression et de température, et non dans les conditions d'entrée dans la colonne. Les vitesses superficielles dans les conditions d'entrée dans la colonne correspondantes sont regroupées dans le Tableau III.1 (cf. Chapitre III). Par ailleurs, la définition de l'écart au bilan thermique donnée dans l'article est bien celle utilisée dans ce mémoire (cf. équation (III-4)), contrairement à ce que suggère l'équation (2) de l'article, dans laquelle  $N$  représente le nombre de parties droites de tube, descendantes et montantes.

Par ailleurs, depuis la création de l'article, une erreur a été découverte dans le système d'acquisition des données sur la boucle HORTHENS. Le polynôme de conversion du signal du débitmètre du tube « long », renseigné par le technicien s'occupant de la boucle HORTHENS, s'est avéré ne pas correspondre au certificat d'étalonnage le plus récent. En conséquence, les débits obtenus après conversion du signal étaient supérieurs d'environ 6 % à leurs valeurs réels. Cela explique notamment les valeurs de l'écart au bilan thermique présentées dans l'article et le fait qu'elles ne correspondent pas à celles de la Figure III.7. Autre conséquence de cette erreur, les coefficients de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes de refroidissement calculés pour les deux parties droites du tube « long » (ou « Tube 1 ») sont eux aussi entachés d'une erreur.

Enfin, cet article présente dans le paragraphe « Influence of the shell fluid » des résultats concernant l'utilisation de l'eau comme fluide de calandre, à la place de l'huile Syltherm XLT®. Il a été choisi de ne pas faire référence à ces essais dans ce manuscrit. Néanmoins, ils nous ont inspirés l'étude de cas présentée au paragraphe II-2.3.



# HEAT TRANSFER METROLOGY ISSUES IN TWO-PHASE BUBBLE COLUMN REACTORS

Pierre-Emmanuel BELIARD <sup>a</sup>, Daniel SCHWEICH <sup>b</sup>, Patrice CLEMENT <sup>a</sup>, Paola GAUTHIER-MARADEI <sup>a</sup>, Nicolas DROMARD <sup>c</sup>

<sup>a</sup> LETH, CEA-LITEN, 17, rue des Martyrs, 38000 Grenoble (France)

<sup>b</sup> LGPC, Université de Lyon-CNRS, ESCPE, 43 Bd du 11 Novembre, BP 2077, 69616 Villeurbanne (France)

<sup>c</sup> TOTAL, Research Centre of Gonfreville, Refining & Process – Chemical Engineering, PO Box 27, 76700 Harfleur (France)

**Abstract:** The metrology and the impact of various parameters and operating conditions on the bulk-to tube heat transfer coefficients in two-phase bubble columns are investigated on a small scale mock-up. It is shown that: 1) quasi-adiabatic conditions can be reached in the column; 2) the bulk-to-tube heat transfer coefficients for each U-tube downward and upward sections may or may not differ significantly, depending on the way uncertainty of the measurements is estimated; 3) using the different measurements and uncertainty estimates for given conditions, a mean heat transfer coefficient over all tubes is estimated within  $\pm 5\%$ . The consequences for bulk-to-tube heat transfer coefficient prediction in a larger column are discussed.

**Keywords:** heat transfer, bubble columns

## 1. Introduction

First developed in fixed bed reactors in Germany in the 1930s, the Fischer-Tropsch (FT) process converting syngas ( $\text{CO} + \text{H}_2$ ) into a mixture of gaseous and liquid hydrocarbons has also been operated since the 1950s in slurry bubble column reactors (SBCRs) by SASOL for coal-to-liquid operations (Davis, 2002) and more recently in Qatar for gas-to-liquid operations. Hydrodynamic patterns, gas-liquid mass transfer process, and bulk-to-tube heat transfer in such reactors are governed by the gas bubbling through a solid-liquid suspension. SBCRs offer several advantages over fixed bed reactors (Wang et al., 2007). However, hydrodynamics and heat and mass transfer phenomena in these reactors are very complex and are still not well understood despite numerous studies on these subjects.

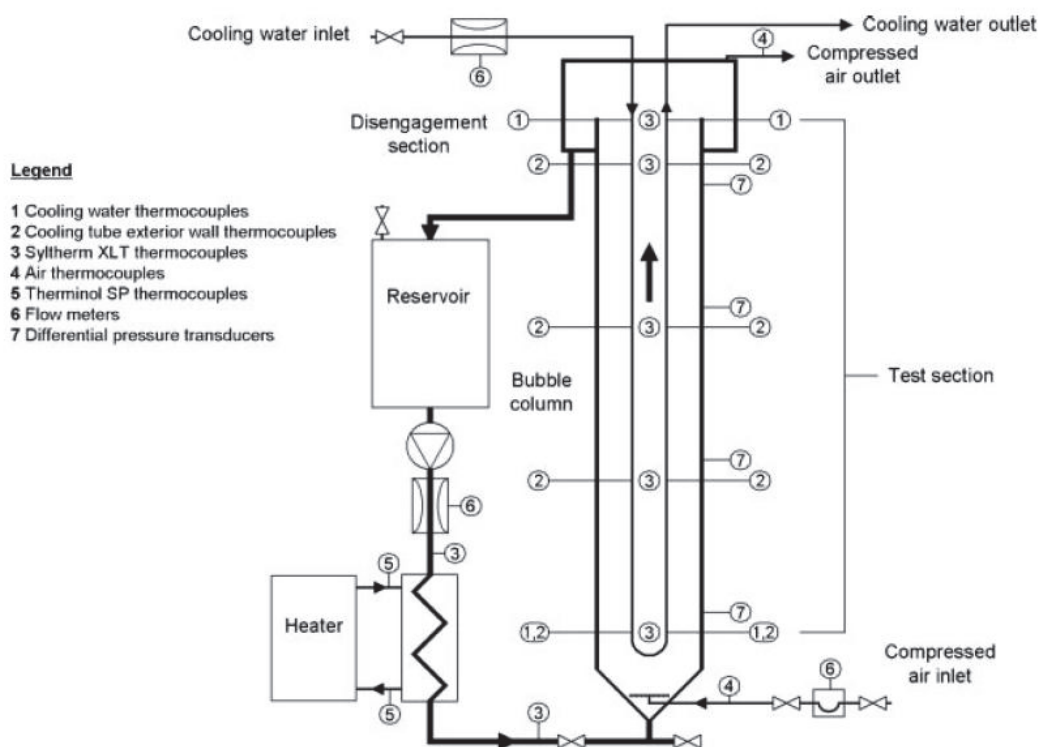
A literature review (Hulet et al., 2008) has revealed that only few authors have considered hydrodynamics and heat transfer simultaneously despite their tremendous importance in SBCRs operation. This is a challenging task as both phenomena are closely interrelated in SBCRs (de Swart, 1996). The aim of our study is to gain a better understanding of the heat transfer metrology in bubble columns and SBCRs equipped with immersed bundles of heat exchange tubes. In a first time, only two-phase bubble columns are considered. The main questions to be answered are: 1) what are the bulk-to-tube heat transfer coefficients along a U-shaped tube? 2) Do they depend upon the tube-fluid flow direction? 3) What is the sensitivity of these coefficients to the operating conditions? 4) What is the reliability of the coefficient? An original set-up that enables simultaneous measurements of hydrodynamics and heat

transfer parameters is described below and the results to the previous questions are given and discussed. Emphasis is laid on the bulk-to-tube heat transfer coefficient determination and the consequences on subsequent design of bubble columns of industrial significance. Experiments were thus carried out in a small diameter column to point out the problems, parameters, and operating conditions that dominate the reliability of the results.

Applications of the latter results to a larger column (1 m in diameter) will be described in a future paper. In addition, solid is to be added in the small diameter column to study the influence of an increase in solid concentration on heat transfer, as results in the literature are confusing. Some authors observed an increase in the value of the heat transfer coefficient with increasing solid concentration (Deckwer et al., 1980; Fazeli et al. 2008), while others reported a decrease (Li and Prakash, 1997; Li et al., 2003).

## 2. Experimental Setup

The experimental setup is described in Figure 1. It was designed to assess the potential metrology problems related to heat transfer measurements. The column is a 4.4 m high, 0.15 m in diameter and 5 mm thick Plexiglas tube. The column diameter was chosen according to the observations of various authors, who gave some rules of thumb to avoid distributors and disengagement effects (Kölbel and Ralek, 1980; Wilkinson et al., 1992; Krishna, 2000).



**Figure 1** Experimental Setup

The gas distributor is a cross-shaped sparger (51 downward-facing 0.7- and 1-mm holes). The test section begins at 0.4 m above this distributor and is 3.4 m high. Heat generation due to reaction is simulated by recycling the shell fluid through an external heat exchanger, which induces inlet superficial liquid velocities close to  $0.1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ . Thus, our setup may differ from

industrial FT SBCRs which can be seen as batch reactors as a first assumption. However, the influence of the inlet superficial liquid velocity has not been investigated thoroughly, since exact representativeness is not required for metrology purposes. Heat removal in the column is obtained through two stainless steel U-shaped immersed tubes fed with water. They are within perpendicular planes relatively to each other to mimic a square pitch unit cell. Their inner and outer diameters are 0.0224 m and 0.0267 m, respectively.

Syltherm XLT thermal oil is used as shell fluid because its physical properties are similar to the oil phase under FT conditions. Moreover, because of its low saturation vapour pressure ( $P_{sat} = 1800$  Pa at  $T = 333$  K), the vaporization process can be neglected in the heat balance. Finally, it enables a sufficient inlet/outlet temperature difference to ensure a good precision in the determination of a heat transfer coefficient. The gas phase is dry compressed air. Both fluids flow upwardly within the shell.

The column is equipped with thermocouples at four different elevations in order to measure the temperature within the shell. A total of 16 thermocouples, that is 4 per vertical branch of the U-tubes, are mounted flush to the exterior tube walls at the same four elevations. Additional thermocouples record inlet and outlet temperatures of the column, the heater, the heat exchanger, the U-tubes and the compressed air system respectively. In addition, four interconnected pressure taps, equally spaced around the column circumference, are installed at four different levels on the column and are connected to four differential pressure transducers for gas holdup determination. Finally, flow meters record inlet flow rates for the column, the tap water system, each U-tube, and the compressed air system.

### 3. Results and Discussions

All experiments have been carried out at ambient pressure. Typical experimental conditions are summarised in Table 1. For all experiments, superficial liquid velocities in the shell and within the cooling tubes were respectively 0.08 and 0.76  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ . Heater outlet temperature was set to 328 K. Data collection started once thermal steady-state regime was achieved.

**Table 1** *Experimental Conditions*

Experiment	Superficial gas velocity ( $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ )	$\Sigma q_{\text{wat}} [\Delta T]$		$q_{\text{XLT}} [\Delta T]$		$q_{\text{air}} [\Delta T]$	
		(kW)	[K]	(kW)	[K]	(kW)	[K]
1	0.02	15.87	[6.6]	15.21	[8.3]	0.01	[21.8]
2	0.04	16.85	[7.4]	16.23	[9.0]	0.01	[19.4]
3	0.06	17.37	[7.3]	16.90	[9.5]	0.02	[18.4]
4	0.08	18.15	[7.5]	17.56	[9.4]	0.02	[17.1]
5	0.10	18.31	[7.5]	17.78	[9.6]	0.03	[15.9]
6	0.11	18.12	[7.9]	17.66	[9.6]	0.03	[14.9]
7	0.15	18.49	[7.5]	17.99	[10.0]	0.04	[14.0]
8	0.19	18.88	[7.6]	18.19	[10.1]	0.04	[13.5]
9	0.22	18.78	[8.0]	18.15	[10.0]	0.05	[12.6]
10	0.28	18.89	[7.6]	17.85	[9.8]	0.06	[11.5]

#### 3.1. Heat balance

Heat rates are calculated for all fluids circulating within the test section using equation (1). Note that the U-shaped parts at the bottom of the tubes can be neglected. Each U-tube is thus divided in two vertical sections (see Figure 3). Inlet and outlet temperatures of water circulating inside each tube section are recorded so that heat rate calculations are also possible

for the tube sections. The physical properties of each fluid are constant and are evaluated at the mean temperature,  $T_m$ , of the considered fluid over the length of the test section.

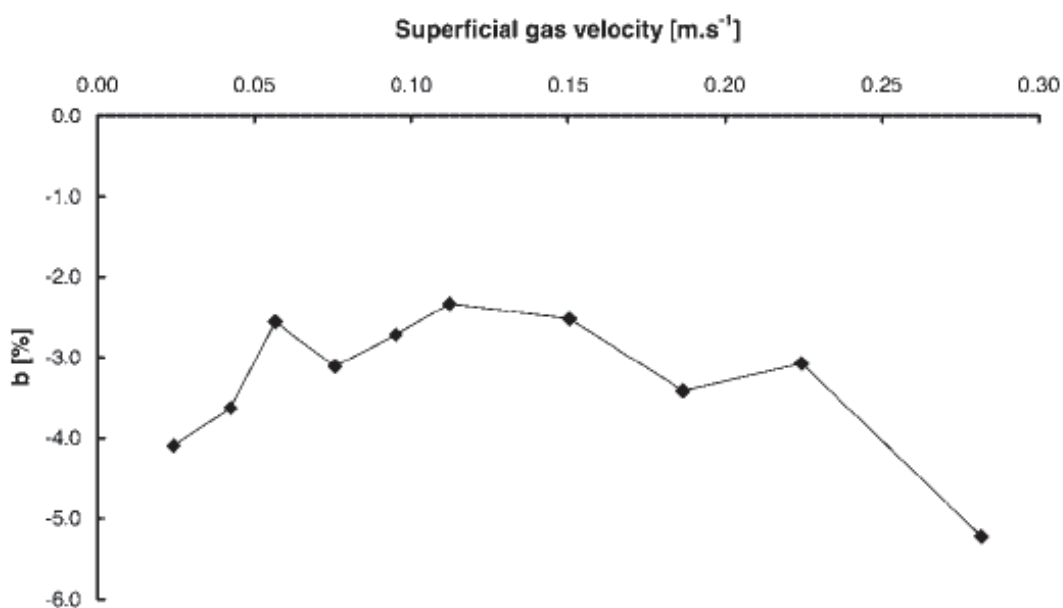
$$q = \dot{m}C_p(T_m)\Delta T \quad (1)$$

Heat balance accuracy is then estimated with equation (2).

$$b = \frac{|q_{XLT} + q_{air}| - \left| \sum_N q_{wat} \right|}{\left| \sum_N q_{wat} \right|} \cdot 100 \quad (2)$$

Assuming that heat loss at the column wall is governed by natural convection of surrounding air, it has been estimated to be 0.03% of water and Syltherm XLT heat rates (see Table 1) and is therefore negligible. Let us remark that heat loss through column wall affects  $q_{XLT}$  only. Then, heat loss being only estimated, it has been chosen to use the sum of heat rates calculated for each U tube straight section as a reference for the calculation of  $b$  instead of  $q_{XLT}$ . The smaller  $b$ , the more accurate the heat balance is.

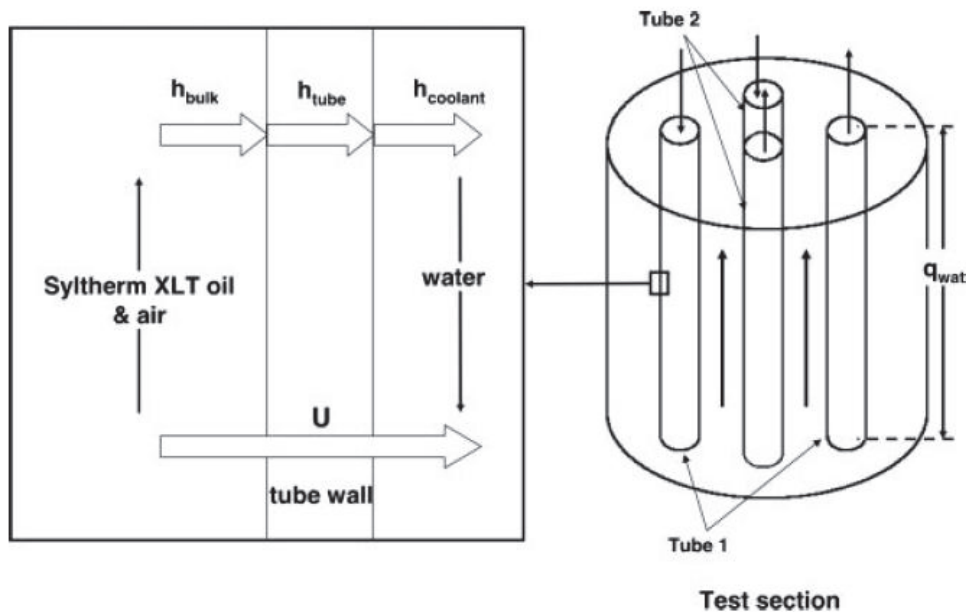
Variations of  $b$  with superficial gas velocity ( $u_G$ ) are plotted in Figure 2. For all experiments,  $b$  remains around -5 % and is significantly greater than the potential contribution of heat loss. Moreover, it is surprising that  $b$  is always negative. This means that the heat rate gained by water inside the cooling tubes is always higher than the sum of heat rates released by Syltherm XLT oil and air. Taking heat losses into account would worsen heat balance even more. Uncertainty calculations have been done to gain better comprehension, but they only explained 2% of the deviation. However, an error of 5% on  $b$  corresponds to an error of 0.1-0.3°C on the measurement of inlet-outlet temperature difference of water and/or of the oil, which is possible as the precision of our thermocouples is between 0.1 and 0.2°C. Consequently, the heat balance accuracy is considered to be satisfying for our purpose.



**Figure 2** Variations of heat balance accuracy with superficial gas velocity

### 3.2. Heat transfer coefficients calculations

For the purpose of analysis, each U-tube is arbitrarily divided in two sections: one section is defined as a counter-flow heat exchanger with water circulating downwardly inside the tube, while the other one is defined as a parallel-flow heat exchanger with water circulating upwardly inside the tube (see Figure 3). As mentioned previously, the U-shaped parts at the bottom of the tubes are neglected. It has been checked that their contributions to the overall heat transfer are negligible. So, the shell-tube heat exchanger is modelled as four concentric tube heat exchangers. Each heat exchanger so defined is ‘connected’ to the others by the Syltherm XLT oil temperatures, which are the results of the exchanges between the shell and the 4 tube sections at every elevation.



**Figure 3** Heat transfer at the tube wall

Heat transfer between the shell fluid and water circulating inside one cooling tube section results from convection between the shell fluid and the external tube wall, conduction inside the tube wall, and convection between the internal tube wall and water (see Figure 3). Each phenomenon is accounted for by a heat transfer coefficient, which characterizes the heat transfer ability of the three regions. Our aim is to calculate the bulk-to-tube heat transfer coefficient ( $h_{bulk}$ ) corresponding to the external region.

#### 3.2.1. Overall heat transfer coefficients

From the water heat rates calculated for all tube sections at thermal steady-state regime and because the physical properties of water are considered to be constant over the test section, an overall heat transfer coefficient per tube section can be retrieved using equation (3). As the tube sections are considered to be concentric tube exchangers, the logarithmic mean temperature difference is defined with the inlet and outlet temperatures of water for the considered tube section and of Syltherm XLT oil. It takes into account the fact that the tube section is a parallel-flow or a counter-flow heat exchanger.

$$U = \frac{q_{wat}}{A\Delta T_{lm}} \quad (3)$$

The overall heat transfer coefficients increase with increasing superficial gas velocity until it reaches an asymptotic value. These results were expected and agree with previous results described in the literature (de Swart, 1996; Krishna, 2000; and earlier works cited in the latter references).

The reciprocal of a heat transfer coefficient is the resistance associated to heat transfer. Hence,  $1/U$  will be the global resistance to heat transfer between the shell fluid and water circulating inside the tube. As suggested by Figure 3, it is the sum of all resistances in the system. Taking into account the cylindrical geometry of the cooling tubes,  $1/U$  is then defined by equation (4), which can be used to calculate the bulk-to-tube heat transfer coefficients (Incropera and DeWitt, 1990a).

$$\frac{1}{U} = \frac{d_{tube}^{out}}{d_{tube}^{in} h_{coolant}} + \frac{d_{tube}^{out}}{2\lambda_{tube}} \ln\left(\frac{d_{tube}^{out}}{d_{tube}^{in}}\right) + \frac{1}{h_{bulk}} \quad (4)$$

Under typical operating conditions, the tube wall, coolant, and bulk fractional resistances to heat transfer amount respectively at 10, 20 and 70%. This was expected as the experimental setup was designed purposefully. This is favourable for  $h_{bulk}$  determination.

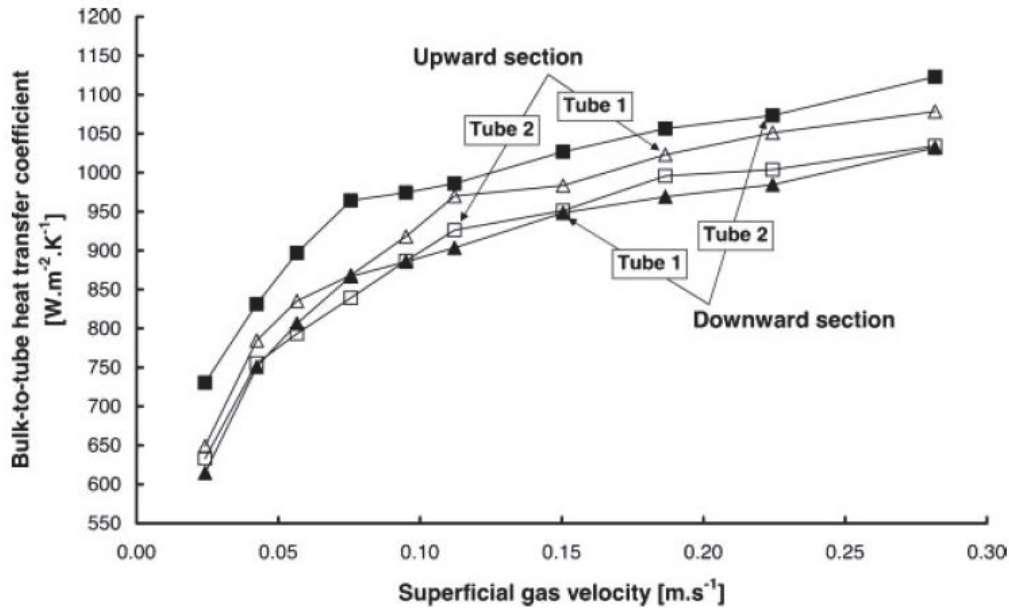
### 3.2.2. Bulk-to-tube heat transfer coefficients

Using equation (4), it is possible to calculate the bulk-to-tube heat transfer coefficient ( $h_{bulk}$ ) if the coolant-to-tube heat transfer coefficient ( $h_{coolant}$ ) is known. Because of the predominance of the bulk-to-tube heat transfer resistance over all other resistances in the system, a correlation can be safely used to calculate  $h_{coolant}$ . The well-known Dittus-Bolter correlation has been selected as it is commonly used to calculate heat transfer coefficients inside cylindrical tubes (Incropera and DeWitt, 1990b). The physical properties used to calculate the Reynolds, Prandtl and Nusselt numbers are evaluated at bulk temperature, which is much practical compared to other correlations that might be found in the literature. In addition, the Dittus-Bolter correlation gives heat transfer coefficients that are only 8% higher than those predicted by the Gnielinski formula (Gnielinski, 1976), whose predictions were recently found to be well supported by the experimental data in the range  $Re > 4800$  (Abraham et al., 2009). Again, the uncertainty of the correlation prediction is not an issue for further calculations because of the predominance of the bulk-to-tube heat transfer resistance over all other resistances in the system.

$$Nu = \frac{h_{coolant} \cdot d_{tube}^{in}}{\lambda_{water}} = 0.0243 \cdot Re^{0.8} \cdot Pr^{0.4} \quad (5)$$

Bulk-to-tube heat transfer coefficients are then determined for each tube section using equations (3) to (5). Variations of these coefficients with superficial gas velocity are plotted in Figure 4. As expected, they increase linearly with superficial gas velocity in homogeneous regime, before reaching an asymptotic value in heterogeneous regime (de Swart, 1996; Krishna, 2000).





**Figure 4** Bulk-to-tube heat transfer coefficients versus superficial gas velocity

One may expect the four bulk-to-tube coefficients calculated to be close to each other, the counter- or parallel-flow pattern being accounted by the logarithmic mean temperature difference in equation (3). However, differences exist. The two U-tubes appear to have an asymmetric behaviour relatively to heat transfer if one considers the relative positions of the curves related to the tube sections. For U-tube n°1, the downward section has lower heat transfer coefficients than the upward section on the range of superficial gas velocities studied. For U-tube n°2, it is the opposite. Hence, an uncertainty analysis has been conducted to determine the significance of these observations.

### 3.3 Uncertainty analysis

Two cases may be considered when calculating heat transfer coefficients using equations (3) to (5). On one hand, a coefficient may be calculated at each time step, along data recorded at thermal steady state regime; then the time averaged coefficient is calculated. On the other hand, experimental data may be time-averaged prior to the calculations. Note that because data are recorded at thermal steady-state regime the two ways of calculating heat transfer coefficients yield the same results. In the first case, the standard deviation of the coefficients distribution over time can be considered as a measure of the uncertainty associated to the heat transfer coefficient determination ( $\sigma_1$ ). In the second case, this uncertainty has to be estimated using a theoretical formula similar to the one given in equation (6).

$$h_{bulk} = f(x_1, x_2, \dots, x_n)$$

$$\sigma_2 = \sqrt{\sum_{i=1}^n \left[ \frac{\partial f}{\partial x_i} \right]^2 (\sigma_{x_i})^2} \quad (6)$$

In the above equation, the  $x_i$  parameters are supposed to be subjected to independent and additive random errors. This may induce an overestimation of the uncertainty if several parameters are inter-correlated.

Additionally, the uncertainty associated to our experiments ( $\sigma_3$ ) was estimated by reproducing the same test and by considering the results standard deviation. Finally, a global estimation of the uncertainty of the bulk-to-tube heat transfer coefficient calculation was done by cumulating either  $\sigma_1$  and  $\sigma_3$ , or  $\sigma_2$  and  $\sigma_3$ , using equation (7).

$$\sigma_4^{i+3} = \sqrt{(\sigma_i)^2 + (\sigma_3)^2}, i = 1 \text{ or } 2 \quad (7)$$

Results of the uncertainty analysis are given in Table 2. A significant difference exists between the two ways of estimating the global uncertainty of the heat transfer coefficient calculations. This leads to the following conclusion: the two U-tubes may be seen as different if  $\sigma_4^{1+3}$  is used or completely equivalent if  $\sigma_4^{2+3}$  is used (see Figure 5 and Figure 6, respectively). It is difficult to decide which case is closer to the reality. However, the problem is of importance since a real column contains more than two U-tubes: do the tubes have a similar heat transfer coefficient that can be estimated on the basis of a general correlation or do the heat transfer coefficients differ significantly from one tube to another? If the latter is true, one may then wonder whether a correlation deduced from measurements made on sparse tubes within a bundle is reliable or not.

**Table 2** Uncertainty analysis results

From time ( $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ )	From experiment ( $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ )
$\sigma_1 \approx 0.03\bar{h}$	$\sigma_2 \approx 0.08\bar{h}$
From reproducibility ( $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ )	
$\sigma_3 \approx 0.02\bar{h}$	
Global estimation ( $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ )	
$\sigma_4^{1+3} \approx 0.03\bar{h}$	$\sigma_4^{2+3} \approx 0.08\bar{h}$

The relatively small diameter of our column and the highly turbulent flow induced by the bubbles rising in the shell may be in favour of an equivalence of the U-tubes relatively to heat transfer. So, averaging the heat transfer coefficients over the full set of tube sections is thought to be sufficient to characterise the bulk-to-tube heat transfer in this bubble column. Furthermore, it is the only tractable estimation method from the industrial point of view. Recently, Laborde-Boutet et al. (2009) have used CFD modelling to simulate the hydrodynamic/thermal coupling phenomena in this experimental setup. Results of these simulations agree well with experimental data when considering an average heat transfer coefficient. The uncertainty associated to this mean coefficient ( $\sigma_5$ ) might be estimated using equation (8). For our operating conditions,  $\sigma_5$  was found to be around five per cent of  $h_{bulk}$ .

$$\sigma_5 = \sqrt{\frac{1}{N^2} \sum_{i=1}^N [\sigma_4^{2+3}(i)]^2} \quad (8)$$

Alternatively, the exact location of the tube bundle with respect to the column or the tilt with respect to the column axis may also be critical parameters. This has never been described nor reported except in the paper by Larachi et al. (2006), where CFD modelling suggests unexpected flow behaviour. This may be of importance in bubble columns of larger diameter and should be further investigated.

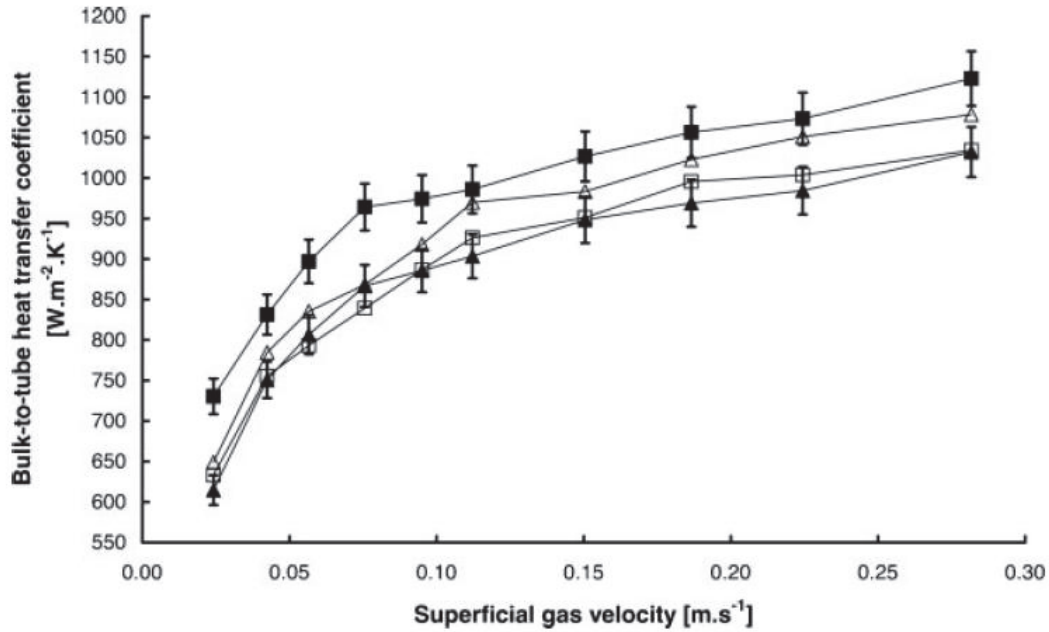


Figure 5 Results of the uncertainty analysis – error bars corresponding to  $\sigma_4^{1+3}$

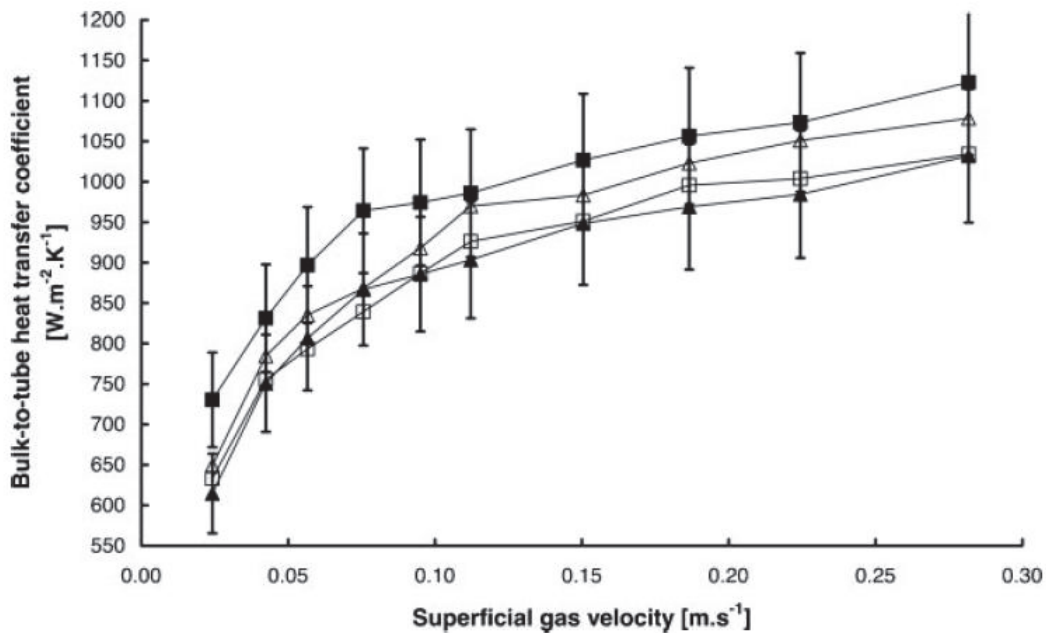
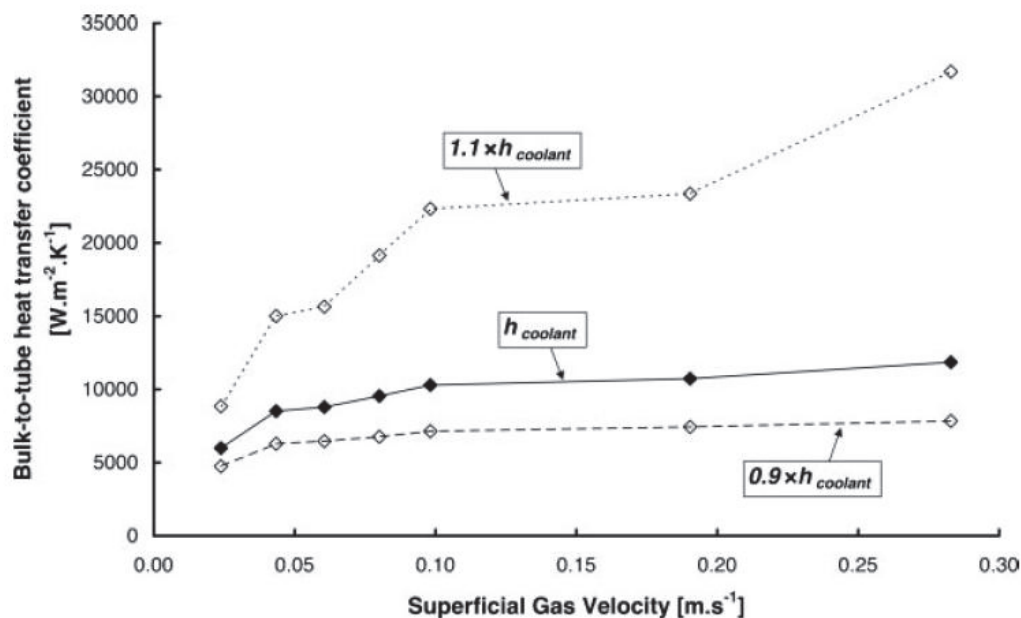


Figure 6 Results of the uncertainty analysis – error bars corresponding to  $\sigma_4^{2+3}$

#### 4. Influence of the shell fluid

Prior to the tests presented above, experiments have been done with water as shell fluid, in similar conditions as the ones listed in Table 1, in order to collect data directly comparable with literature results. However, it appeared that the main heat transfer resistance was located within the cooling tubes and not within the shell. This can be explained by the larger thermal conductivity of water compared to that of Syltherm XLT oil ( $\lambda_{XLT} = 0.11 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $\lambda_{water} = 0.58 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ), which makes the bulk-to-tube resistance to decrease with increasing superficial gas velocity. Hence the results of the heat transfer coefficients calculations based on equations (3) to (5) were inconclusive because they were sensitive to the estimated value of  $h_{coolant}$  (see equation (5)). It can be seen on Figure 7 that, in our experimental conditions, a

10 per cent change of the value of this coefficient yields to significantly different bulk-to-tube heat transfer coefficients. In addition, the larger heat capacity of water makes the temperature difference over the shell to be of the order of 5 K, instead of 10 K with Syltherm XLT oil, which is eventually responsible for an uncertainty twice as large with water as the shell fluid.



**Figure 7** Variation of the value of  $h_{bulk}$  with the estimated value of  $h_{coolant}$  when water is used as shell fluid<sup>22</sup>

Care must be taken when designing such an experimental setup to ensure that the main resistance to heat transfer lies in the region where heat transfer coefficients have to be measured. In addition, cooling tubes and shell inlet/outlet temperature differences of at least 10 K have to be reached to improve the measurement accuracy. Choosing Syltherm XLT oil instead of water as shell fluid was a solution in our case, because its thermal conductivity and specific heat are six times and two times lower than those of water, respectively. Furthermore, its viscosity is closer to that of real FT oil phase. Krishna (2000) already showed the interest of using an oil phase instead of water.

## 5. Conclusions

The experimental set-up can be run in quasi-adiabatic conditions. The metrology implemented for the study of heat transfer in bubble columns and slurry bubble columns gives results that are consistent with literature data and CFD modelling, provided the main resistance to heat transfer is located within the shell. The uncertainty of our measurements has been assessed to be between 3% and 8%. Considering an average heat transfer coefficient based on the calculations made for each U-tube straight section seems to be a valid option. This will be an asset for design purpose as it will provide a good estimation of the bulk-to-tube heat transfer coefficient in the column. However, more work would be welcome to know whether tube difference in terms of heat transfer coefficient falls with ‘normal’ uncertainty due for instance

<sup>22</sup> La Figure 7, identique à celle de l'article publié, comporte une erreur : il faut inverser les étiquettes des courbes pointillées pour retrouver les variations du coefficient de transfert de chaleur à la paroi externe des tubes, avec l'augmentation ou la diminution du coefficient de transfert de chaleur à l'intérieur des tubes de refroidissement,  $h_{eau}$ , telles qu'elles sont décrites au paragraphe II-2.3 de ce manuscrit.

to turbulent flow fluctuations or is significant of some assumption (tilt, off centre, irregular pitch...) which is not fulfilled although it may have a significant impact on local and global hydrodynamics. In the future, these results will be applied to a larger column (1 m in diameter) to get further insight in the latter question.

### Nomenclature

Variable	Unit	Description
$A$	$m^2$	Heat transfer area
$b$	-	Heat balance accuracy
$C_p$	$J.kg^{-1}.K^{-1}$	Specific heat capacity
$d_{tube}^{in}$	m	Cooling tube inner diameter
$d_{tube}^{out}$	m	Cooling tube outer diameter
$f$	-	Function
$h_{bulk}$	$W.m^{-2}.K^{-1}$	Bulk-to-tube heat transfer coefficient
$h_{coolant}$	$W.m^{-2}.K^{-1}$	Coolant-to-tube heat transfer coefficient
$h_{tube}$	$W.m^{-2}.K^{-1}$	Heat transfer coefficient characterising heat transfer by conduction in the tube wall
$\dot{m}$	$kg.s^{-1}$	Mass flow rate
$n$	-	Number of elements
$N$	-	Number of U-tube straight sections
$Nu$	-	Nusselt number
$Pr$	-	Prandtl number
$P_{sat}$	Pa	Saturation vapour pressure
$q$	W	Heat rate
$Re$	-	Reynolds number
$T$	K	Temperature
$U$	$W.m^{-2}.K^{-1}$	Overall heat transfer coefficient
$u_G$	$m.s^{-1}$	Superficial gas velocity
$x$	S.I. unit	Parameter

### Greek Symbols

Variable	Unit	Description
$\Delta T_{lm}$	K	Logarithmic mean of temperature
$\lambda_{tube}$	$W.m^{-1}.K^{-1}$	Tube wall material thermal conductivity
$\lambda_{water}$	$W.m^{-1}.K^{-1}$	Water thermal conductivity
$\lambda_{XLT}$	$W.m^{-1}.K^{-1}$	Syltherm XLT oil thermal conductivity
$\sigma$	S.I. unit	Uncertainty estimation

### References

- Abraham, J.P., Sparrow, E.M., Tong, J.C.K., "Heat Transfer in All Pipe Flow Regimes: Laminar, Transitional/Intermittent, and Turbulent", *Int. J. Heat Mass Transfer*, **52** (3-4), 557-563 (2009).
- Davis, B.H., "Overview of Reactors for Liquid Phase Fischer-Tropsch Synthesis", *Catal. Today*, **71** (3-4), 249-300 (2002).
- de Swart, J.W.A., "Scale-Up of a Fischer-Tropsch Slurry Reactor", *PhD Thesis*, University of Amsterdam (1996).

- Deckwer, W.D., Louisi, Y., Zaidi, A., Ralek, M., "Hydrodynamic Properties of the Fischer-Tropsch Slurry Process", *Ind. Eng. Chem. Proc. Des. Dev.*, **19** (4), 699-708 (1980).
- Fazeli, A., Fatemi, S. Ganji, E., Khakdaman H.R., "A Statistical Approach of Heat Transfer Coefficient Analysis in the Slurry Bubble Column", *Chem. Eng. Res. Des.*, **86** (5), 508-516 (2008).
- Gnielinski, V., "New Equations for Heat and Mass Transfer in Turbulent Pipe and Channel Flow", *Int. Chem. Eng.*, **16**, 359-367 (1976).
- Hulet, C., Clément, P., Tochon, P., Schweich, D., Dromard, N., Anfray, J., "Literature Review on Heat Transfer in Two-Phase Bubble Columns and Three-Phase Slurry Bubble Columns and Fluidized Beds", *Int. J. Chem. Reactor Eng.*, **7** (2009).
- Incropera, F.P., DeWitt, D.P., "One-Dimensional, Steady-State Conduction" in "Fundamentals of Heat and Mass Transfer, Third Edition", Incropera, F.P. and DeWitt, D.P., John Wiley & Sons, New York (1990a), pp. 96-99
- Incropera, F.P., DeWitt, D.P., "Convection Correlations: Turbulent Flow in Circular Tubes" in "Fundamentals of Heat and Mass Transfer, Third Edition", Incropera, F.P. and DeWitt, D.P., John Wiley & Sons, New York (1990b), pp. 495-498
- Kölbel, H., Ralek, M., "The Fischer-Tropsch Synthesis in the Liquid Phase", *Catal. Rev. Sci. Eng.*, **21** (2), 225-274 (1980).
- Krishna, R., "A Scale-Up Strategy for a Commercial Scale Bubble Column Slurry Reactor for Fischer-Tropsch Synthesis", *Oil Gas Sci. Technol. – Rev. IFP*, **55** (4), 359-393 (2000).
- Laborde-Boutet, C., Larachi, F., Dromard, N., Delsart, O., Béliard, P.E., Schweich, D., "CFD simulations of hydrodynamic/thermal coupling phenomena in a bubble column with internals", *AIChE J.*, to be published (2009)
- Larachi, F., Desvignes, D., Donnat, L., Schweich, D., "Simulating the effects of liquid circulation in bubble columns with internals", *Chem. Eng. Sci.*, **61** (13), 4195-4206 (2006).
- Li, H., Prakash, A., "Heat Transfer and Hydrodynamics in a Three-Phase Slurry Bubble Column", *Ind. Eng. Chem. Res.*, **36** (11), 4688-4694 (1997).
- Li, H., Prakash, A., Margaritis, A., Bergounou, M.A., "Effect of Micron-Sized Particles on Hydrodynamics and Local Heat Transfer in a Slurry Bubble Column", *Powder Technol.*, **133** (1-3), 171-184 (2003).
- Wang, T., Wang, J., Jin, Y., "Slurry Reactors for Gas-To-Liquid Processes: A Review", *Ind. Eng. Chem. Res.*, **46** (18), 5824-5847 (2007).
- Wilkinson, P.M., Spek, A.P., van Dierendonck, L.L., "Design Parameters Estimation for Scale-Up of High Pressure Bubble Columns", *AIChE J.*, **38** (4), 544-554 (1992).

## Annexe H : Références Bibliographiques

- Abdulmohsin, R.S., Abid, B.A., Al-Dahhan, M.H., **Heat Transfer Study in a Pilot-Plant Scale Bubble Column**, *Chemical Engineering Research and Design*, In Press (2010)
- Akita, K., Yoshida, F., **Gas Holdup and Volumetric Mass Transfer Coefficient in Bubble Columns - Effect of Liquid Properties**, *Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development*, **12** (1), pp.76-80 (1973)
- Asselineau, C.A., **Modélisation des Echanges Thermiques dans une Colonne à Bulles pour le Procédé Fischer-Tropsch**, *Rapport de stage* (2009)
- Behkish, A., Lemoine, R., Oukaci, R., Morsi, B.I., **New Correlations for Gas Holdup in Large-Scale Slurry Bubble Column Reactors Operated under Elevated Pressures and Temperatures**, *Chemical Engineering Journal*, **115** (3), pp.157-171 (2006)
- Béliard, P.E., Schweich, D., Clément, P., Gauthier-Maradei, P., Dromard, N., **Heat Transfer Metrology Issues in Two-Phase Bubble Column Reactors**, *Canadian Journal of Chemical Engineering*, **88** (4), pp.543-550 (2010)
- Blanc, Ph., **Condensation des Fluides Frigorigènes HFC134a et HCFC22 à l'Extérieur d'un Faisceau de Tubes Horizontaux Améliorés**, *PhD Thesis*, Université Joseph Fourier - Grenoble 1 (1994)
- Bonnier, G., Devin, E., **Couples Thermoélectriques - Caractéristiques et Mesure de Température**, *Techniques de l'Ingénieur*, **R 2 590** (1997)
- Bowman, R.A., Mueller, A.C., Nagle, W.M., **Mean Temperature Difference in Design**, *Transactions of the American Society of Mechanical Engineers*, **62**, pp.283-294 (1940)
- Boyer, C., Duquenne, A.M., Wild, G., **Measuring Techniques in Gas-Liquid and Gas-Liquid-Solid Reactors**, *Chemical Engineering Science*, **57** (16), pp.3185-3215 (2002)
- Childs, P.R.N., Greenwood, J.R., Long, C.A., **Review of Temperature Measurement**, *Review of Scientific Instruments*, **71** (8), pp.2959-2978 (2000)
- Davis, B.H., **Overview of Reactors for Liquid Phase Fischer-Tropsch Synthesis**, *Catalysis Today*, **71** (3-4), pp.249-300 (2002)
- de Swart, J.W.A., **Scale-Up of a Fischer-Tropsch Slurry Reactor**, *PhD Thesis*, University of Amsterdam (1996)
- Deckwer, W.D., **On the Mechanism of Heat Transfer in Bubble Column Reactors**, *Chemical Engineering Science*, **35** (6), pp.1341-1346 (1980)
- Deckwer, W.D., Louisi, Y., Zaidi, A., Ralek, M., **Hydrodynamic Properties of the Fischer-Tropsch Slurry Process**, *Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development*, **19** (4), pp.699-708 (1980)
- Ellenberger, J., Krishna, R., **A Unified Approach to the Scale-Up of Gas-Solid Fluidized Bed and Gas-Liquid Bubble Column Reactors**, *Chemical Engineering Science*, **49** (24), pp.5391-5411 (1994)

- Fan, L.S., Yang, G.Q., Lee, D.J., Tsuchiya, K., Luo, X., **Some Aspects of High-Pressure Phenomena of Bubbles in Liquids and Liquid-Solid Suspensions**, *Chemical Engineering Science*, **54** (21), pp.4681-4709 (1999)
- Fazeli, A., Fatemi, S., Ganji, E., Khakdaman, H.R., **A Statistical Approach of Heat Transfer Coefficient Analysis in the Slurry Bubble Column**, *Chemical Engineering Research and Design*, **86** (5), pp.508-516 (2008)
- Forret, A., Schweitzer, J.M., Gauthier, T., Krishna, R., Schweich, D., **Scale-Up of Slurry Bubble Reactors**, *Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP*, **61** (3), pp.443-458 (2006)
- Green, D.W., Perry, R.H., **Perry's Chemical Engineers' Handbook**, 8<sup>th</sup> ed., McGraw-Hill, New-York (2007)
- Hu, M., Yu, D., Wei, J., **Thermal Conductivity Determination of Small Polymer Samples by Differential Scanning Calorimetry**, *Polymer Testing*, **26** (3), pp.333-337 (2007)
- Hugues, F., **Editorial - The Fischer-Tropsch Process**, *Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP*, **64** (1), pp.3-9 (2009)
- Hulet, C., Clément, P., Tochon, P., **Etude sur les Echanges Thermiques dans les Colonnes à Bulles Type Slurry - Essais de la Phase 1 : Synthèse sur la Métrologie de Caractérisation du Réacteur à une Echelle Réduite**, *Rapport Technique*, n°DTS/DR/2007/48, (2007)
- Hulet, C., Clément, P., Tochon, P., **Literature Review on Heat Transfer in Two-Phase Bubble Columns and Three-Phase Slurry Bubble Columns and Fluidized Beds**, *International Journal of Chemical Reactor Engineering*, **7** (R1) (2009)
- Incropera, F.P., de Witt, D.P., **Fundamentals of Heat and Mass Transfer**, 3<sup>rd</sup> ed., John Wiley and Sons, New York (1990)
- Joshi, J.B., Parasu Veera, U., Prasad, Ch.V., Phanikumar, D.V., Deshpande, N.S., Thakre, S.S., Thorat, B.N., **Review Article: Gas Holdup Structure in Bubble Columns Reactors**, *PINSA*, **64**, A (4), pp.441-567 (1998)
- Kölbel, H., Ralek, M., **The Fischer-Tropsch Synthesis in the Liquid Phase**, *Catalysis Reviews: Science and Engineering*, **21** (2), pp.225-274 (1980)
- Krishna, R., **A Scale-Up Strategy for a Commercial Scale Bubble Column Slurry Reactor for Fischer-Tropsch Synthesis**, *Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP*, **55** (4), pp.359-393 (2000)
- Krishna, R., Ellenberger, J., **Gas Holdup in Bubble Column Reactors Operating in the Churn-Turbulent Flow Regime**, *AIChE Journal*, **42** (9), pp.2627-2634 (1996)
- Krishna, R., Ellenberger, J., Sie, S.T., **Reactor Development for Conversion of Natural Gas to Liquid Fuels: A Scale-Up Strategy Relying on Hydrodynamic Analogies**, *Chemical Engineering Science*, **51** (10), pp.2041-2050 (1996)
- Kumar, S., Fan, L.S., **Heat Transfer Characteristics in Various Gas-Liquid and Gas-Liquid-Solid Systems**, *AIChE Journal*, **40** (5), pp.745-755 (1994)



- Laborde-Boutet, C., Larachi, F., Dromard, N., Delsart, O., Béliard, P.E., Schweich, D., **CFD Simulations of Hydrodynamic/Thermal Coupling Phenomena in a Bubble Column with Internals**, *AIChE Journal*, **56** (9), pp.2397-2411 (2010)
- Larachi, F., Desvigne, D., Donnat, L., Schweich, D., **Simulating the Effects of Liquid Circulation in Bubble Columns with Internals**, *Chemical Engineering Science*, **61** (13), pp.4195-4206 (2006)
- Lehr, F., Millies, M., Mewes, D., **Bubble-Size Distributions and Flow Fields in Bubble Columns**, *AIChE Journal*, **48** (11), pp.2426-2443 (2002)
- LETh, **Transfert de Chaleur dans les Canaux de Section Uniforme (Canal Annulaire - Rectangulaire - Faisceaux)** In Manuel Technique du GRETh (1991)
- Li, H., Prakash, A., **Heat Transfer and Hydrodynamics in a Three-Phase Slurry Bubble Column**, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **36** (11), pp.4688-4694 (1997)
- Li, H., Prakash, A., **Survey of Heat Transfer Mechanisms in a Slurry Bubble Column**, *Canadian Journal of Chemical Engineering*, **79** (5), pp.717-725 (2001)
- Li, H., Prakash, A., Margaritis, A., Bergougnou, M.A., **Effect of Micron-Sized Particles on Hydrodynamics and Local Heat Transfer in a Slurry Bubble Column**, *Powder Technology*, **133** (1-3), pp.171-184 (2003)
- Lin, T.J., Fan, L.S., **Heat Transfer and Bubble Characteristics from a Nozzle in High-Pressure Bubble Columns**, *Chemical Engineering Science*, **54** (21), pp.4853-4859 (1999)
- Luo, X., Lee, D.J., Lau, R., Yang, G.Q., Fan, L.S., **Maximum Stable Bubble Size and Gas Holdup in High-Pressure Slurry Bubble Columns**, *AIChE Journal*, **45** (4), pp.665-680 (1999)
- Maretto, C., Krishna, R., **Modelling of a Bubble Slurry Reactor for Fischer-Tropsch Synthesis**, *Catalysis Today*, **52** (2-3), pp.279-289 (1999)
- Maretto, C., Krishna, R., **Design and Optimisation of a Multi-Stage Bubble Column Slurry Reactor for Fischer-Tropsch Synthesis**, *Catalysis Today*, **66** (2-4), pp.241-248 (2001)
- Mitra-Majumdar, D., Farouk, B., Shah, Y.T., Macken, N., Oh, Y.K., **Two- and Three-Phase Flows in Bubble Columns: Numerical Predictions and Measurements**, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **37** (6), pp.2284-2292 (1998)
- Moffat, R.J., **Using Uncertainty Analysis in the Planning of an Experiment**, *Journal of Fluids Engineering*, **107** (2), pp.173-178 (1985)
- O'Dowd, W., Smith, D.N., Ruethern, J.A., Saxena, S.C., **Gas and Solid Behaviour in a Baffled and Unbaffled Slurry Bubble Column**, *AIChE Journal*, **33** (12), pp.1959-1970 (1987)
- Patel, S.A., Daly, J.G., Bukur, D.B., **Bubble-Size Distributions in Fischer-Tropsch-Derived Waxes in a Bubble Column**, *AIChE Journal*, **36** (1), pp.93-105 (1990)

- Prakash, A., Margaritis, A., Li, H., Bergougnou, M.A., **Hydrodynamics and Local Heat Transfer Measurements in a Bubble Column with Suspension of Yeast**, *Biochemical Engineering Journal*, **9** (2), pp.155-163 (2001)
- Rados, N., **Slurry Bubble Column Hydrodynamics**, *PhD Thesis*, Washington University, Saint Louis, Missouri (2003)
- Rados, N., Shaikh, A., Al-Dahhan, M.H., **Solids Flow Mapping in a High Pressure Slurry Bubble Column**, *Chemical Engineering Science*, **60** (22), pp.6067-6072 (2005)
- Saxena, S.C., Rao, N.S., Patel, B.B., **Heat Transfer and Hydrodynamic Investigations in Two- and Three-Phase Systems in a Baffled Bubble Column**, *Proceedings of the 9th International Heat Transfer Conference*, Jerusalem, Israel, **3**, pp 407-412 (1990)
- Saxena, S.C., Vadivel, R., **Heat Transfer from a Tube Bundle in a Bubble Column**, *International Communications in Heat and Mass Transfer*, **15** (5), pp.657-667 (1988)
- Schäfer, R., Merten, C., Eigenberger, G., **Bubble Size Distributions in a Bubble Column Reactor under Industrial Conditions**, *Experimental Thermal and Fluid Science*, **26** (6), pp.595-604 (2002)
- Schlüter, S., Steiff, A., Weinspach, P.M., **Heat Transfer in Two- and Three-Phase Bubble Columns Reactors with Internals**, *Chemical Engineering and Processing*, **34** (3), pp.157-172 (1995)
- Sehabiague, L., Lemoine, R., Behkish, A., Heintz, Y.J., Sanoja, M., Oukaci, R., Morsi, B.I., **Modelling and Optimization of a Large-Scale Slurry Bubble Column Reactor for Producing 10,000 bbl/day of Fischer-Tropsch Liquid Hydrocarbons**, *Journal of the Chinese Institute of Chemical Engineers*, **39** (2), pp.169-179 (2008)
- Steynberg, A.P., Dry, M.E., **Fischer-Tropsch Technology**, 1<sup>st</sup> ed., *Studies in Surface Science and Catalysis*, Vol.152, Elsevier, Amsterdam (2004)
- Suh, I.S., Deckwer, W.D., **Heat Transfer In Three-Phase Sparged Reactors**, Nigam, K. D. P., Schumpe, A., Eds., *Topics in Chemical Engineering*, Vol.8, Gordon and Breach Publishers, Amsterdam (1996)
- Tchung-Ming, S., Vinot, S., **Les Energies pour le Transport: Avantages et Inconvénients**, *Panorama 2009*, IFP (2009)
- Thureau, P., **Fluxmètres Thermiques**, *Techniques de l'Ingénieur*, **R2900** (1996)
- Urseanu, M.I., **Scaling Up Bubble Column Reactors**, *PhD Thesis*, University of Amsterdam (2000)
- van der Laan, G.P., **Kinetics, Selectivity and Scale-Up of the Fischer-Tropsch Synthesis**, *PhD Thesis*, University of Groningen (1999)
- Wang, T., Wang, J., Jin, Y., **Slurry Reactors for Gas-To-Liquid Processes: A Review**, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **46** (18), pp.5824-5847 (2007)

- Warsito, Ohkawa, M., Kawata, N., Uchida, S., **Cross-Sectional Distributions of Gas and Solid Holdups in Slurry Bubble Column Investigated by Ultrasonic Computed Tomography**, *Chemical Engineering Science*, **54** (21), pp.4711-4728 (1999)
- Wild, G., Poncin, S., **Hydrodynamics In Three-Phase Sparged Reactors**, Nigam, K. D. P., Schumpe, A., Eds., Topics in Chemical Engineering, Vol.8, Gordon and Breach Publishers (1996)
- Wilkinson, P.M., **Physical Aspects of the Scale-Up of High Pressure Bubble Columns**, *PhD Thesis*, University of Groningen (1991)
- Wilkinson, P.M., Spek, A.P., van Dierendonck, L.L., **Design Parameters Estimation for Scale-Up of High Pressure Bubble Columns**, *AIChE Journal*, **38** (4), pp.544-554 (1992)
- Wu, C., Al-Dahhan, M.H., Prakash, A., **Heat Transfer Coefficients in a High-Pressure Bubble Column**, *Chemical Engineering Science*, **62** (1-2), pp.140-147 (2007)
- Yang, G.Q., Luo, X., Lau, R., Fan, L.S., **Heat Transfer Characteristics in Slurry Bubble Columns at Elevated Pressures and Temperatures**, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, **39** (7), pp.2568-2577 (2000)
- Zahradník, J., Fialová, M., **The Effect of Bubbling Regime on Gas and Liquid Phase Mixing in Bubble Column Reactors**, *Chemical Engineering Science*, **51** (10), pp.2491-2500 (1996)

### Sites Internet

- [www.celsius-process.com/outils.php](http://www.celsius-process.com/outils.php), Fiches **Eau** et **Syltherm XLT**, consultées le 04 décembre 2008
- [www.hydrocarbons-technology.com](http://www.hydrocarbons-technology.com), Fiche **Oryx Gas-to-Liquids Complex, Ras-Laffan, Qatar**, consultée le 10 janvier 2008





