

Nouvelles méthodes de mesure des distributions de temps de séjour d'une phase solide transportée

G. Genin^{a,*}, J.L. Houzelot^a, A. Kotro^a, G. Martin^b

^a Laboratoire des Sciences du Génie Chimique, CNRS-ENSIC, BP 451, 54001 Nancy Cedex, France

^b Institut Français du Pétrole, CEDI "René Navarre", BP 3, 69390 Vernaison Cedex, France

Abstract

The aim of this paper is to present two methods for the measurement of the residence time distributions of solid particles in reactors with pneumatic transport flow. Both methods are based on the measurement of the "concentration" of solid by light absorption following the Beer Lambert law. The first method involves the capture of particles on an adhesive surface followed by analysis with a time delay; the second method permits direct analysis in the reactor. A comparison between the two methods is presented, with particular emphasis on their respective advantages and disadvantages. Both measurement methods are capable of attaining short residence times, in the order of 0.1 s.

Le présent article présente deux méthodes de mesure de distributions de temps de séjour de particules solides dans un réacteur à lit transporté. Les deux méthodes sont fondées sur la mesure des "concentrations" de solide par absorption lumineuse selon la loi de Beer Lambert. La première méthode consiste à capter les particules sur une surface adhésive puis à faire l'analyse en temps différé, la seconde permet l'analyse in situ et fournit le résultat en temps réel. Une comparaison des deux méthodes est présentée, notamment en mettant l'accent sur les avantages et les inconvénients respectifs. Toutes deux offrent l'avantage de pouvoir accéder à des temps de séjour inférieur à 0,1 s. © 2001 Elsevier Science B.V. All rights reserved.

Keywords: Mots-clés: Méthodes optiques; Concentrations de particules solides; Distribution de temps de séjour phase solide; Lit transporté; Concentrations; Beer Lambert

1. Introduction

La mesure expérimentale de la distribution des temps de séjour d'une phase solide s'écoulant dans un réacteur à lit transporté est une opération souvent délicate par manque de traceurs appropriés permettant une détection aisée de la population de grains à la sortie du réacteur.

La plupart des méthodes utilisées jusqu'à présent sont fondées sur la détection d'un petit lot de particules à l'entrée et à la sortie d'un dispositif réactionnel. Afin de rendre la méthode plus précise, l'observation oculaire a été remplacée par une détection par cellules photoélectriques, ces méthodes permettent d'estimer à chaque essai le temps de séjour moyen des particules. Ainsi, lorsqu'on dispose d'une détection automatisée, on peut répéter les essais un grand nombre de fois et espérer remonter à la distribution du temps de séjour [1].

D'autres méthodes ont été développées par l'observation des trajectoires de particules au travers de maquette transparente. C'est le cas de la méthode développée par Lédé,

Soullignac et Villermaux [2] par relevé photographique des vecteurs vitesses des particules le long d'une paroi d'un cyclone. Ainsi, en recomposant la trajectoire, ils peuvent estimer le temps de séjour moyen des particules.

L'inconvénient majeur engendré par ces méthodes est que la détermination expérimentale de la distribution des temps de séjour est très difficile car elle nécessite de réitérer un grand nombre de fois les essais pour obtenir une distribution statistique des temps de séjour aussi proche de la réalité.

Certaines méthodes sophistiquées de détection de particules solides citées dans la littérature font appel soit à un traceur radioactif [3], soit, à des méthodes optiques utilisant des caméras, ou, fibres optiques et laser. Ces dernières ont été utilisées pour évaluer les vitesses et concentrations de particules dans des lits fluidisés [4–7] ainsi que dans des réacteurs à lit tombant [8–11]. Plusieurs méthodes de ce type sont décrites par Hartge et coll. [12] et permettent la mesure de concentration de solide [12,13].

Afin de palier ces déficiences, nous proposons dans ce qui suit deux méthodes qui permettent d'obtenir expérimentalement des distributions de temps de séjour de particules solides dans des réacteurs à lit transporté à court temps de passage.

* Corresponding author. Tel.: +33-3-8317-5094; fax: +33-3-8317-5086. E-mail address: genin@ensic.u-nancy.fr (G. Genin).

Nomenclature

D	diamètre intérieur du réacteur (m)
d_p	diamètre moyen des particules (m)
f_p	facteur de frottement des particules
g	accélération de la pesanteur (m/s^2)
I_0	intensité lumineuse en absence d'ozone mesurée par une photodiode fournissant une tension
I_T	intensité lumineuse en présence d'ozone mesurée par une photodiode fournissant une tension
Re	nombre de Reynolds
t_s	temps de séjour des particules (s)
U_0	vitesse du gaz en l'absence de particules (m/s)
U_f	($=U_0/\varepsilon$) vitesse interstitielle du gaz (m/s)
U_p	vitesse des particules (m/s)
U_t	vitesse terminale de chute d'une particule (m/s)

Greek symbols

ε	taux de vide au sein du réacteur
μ_f	viscosité du gaz (Pa s)
ρ_f	masse volumique du gaz (kg/m^3)
ρ_p	masse volumique de la particule de catalyseur (kg/m^3)

La première méthode est fondée sur la notion de "piégeage" des particules sur une surface adhésive. Une fois piégées, les particules peuvent être observées et dénombrées en temps différé, on peut ainsi obtenir aisément la précision de la milliseconde.

La seconde méthode, consiste à faire la mesure in situ au travers d'un dispositif à hublots placés à l'entrée et à la sortie du réacteur. On utilise le principe de l'absorption de la lumière par un "nuage de particules" qui traverse le rayonnement issu d'une source lumineuse et dont l'intensité est mesurée par une cellule photoélectrique.

Pour mettre en œuvre ces deux méthodes, il est nécessaire de développer un système d'injection entièrement automatisé et reproductif et de procéder à la méthode dite "des deux mesures" en relevant les réponses à une perturbation identique à l'entrée et à la sortie du réacteur.

2. La méthode par piégeage des particules

Le dispositif d'injection des particules est calqué sur le principe de la boucle d'injection en chromatographie. Le principe consiste à placer une masse précise et connue de particules solides dans la boucle, et, après fermeture, à actionner un jeu d'électrovannes de telle sorte que le fluide porteur traverse la boucle et entraîne les particules par transport pneumatique.

Le dispositif d'injection est placé très en amont dans le circuit d'alimentation afin que le régime d'écoulement soit établi à l'entrée du réacteur.

A la sortie (ou à l'entrée lorsque l'on souhaite prendre en compte la déformation engendrée par le circuit d'alimentation "méthode des deux mesures") du réacteur, on place, perpendiculairement à la tubulure, un dispositif tournant à vitesse constante et connue. Sur ce disque on a pris soin d'étaler une couche uniforme de vaseline. Le flux gazeux projette les grains sur la paroi du disque où ils sont retenus par la graisse. Sur le disque, un repère optique permet le déclenchement automatique des électrovannes de sorte que la position du disque à l'instant initial et la connaissance de la vitesse de rotation permettent d'associer sur une circonférence le déroulement temporel du piégeage des particules. Ainsi sur un disque d'une trentaine de centimètres de diamètre tournant à un tour par seconde on peut espérer une précision de l'ordre de la milliseconde en repérant la position d'observation au millimètre près.

Après avoir bien pris soin de vérifier que la récupération des particules était totale, on a procédé à un étalonnage de la méthode.

La lecture de la "concentration" de grains piégés sur le disque a fait l'objet d'un traitement d'images [15,16] à partir d'un suivi par caméra numérique et par traitement sur logiciel VISILOG^(r) 3.6.6.

La lumière est analysée par transmission c'est-à-dire que la source lumineuse et la caméra sont placées de part et d'autre du disque. Trois caractéristiques ont été retenues, le niveau de gris, la surface apparente des grains et le nombre d'objets.

Afin de tester la validité de la méthode, on a réalisé une série d'expériences à paramètres opératoires fixés en faisant varier simplement la masse d'échantillon injectée.

Les résultats de cette étude montrent que c'est l'analyse du niveau de gris qui est la méthode la plus fiable sur un domaine opératoire plus vaste. On constate de plus que l'intensité lumineuse transmise obéit à la loi de Beer Lambert ce qui permet de remonter facilement à la "concentration" des grains piégés.

La Fig. 1 présente les résultats obtenus pour deux populations de grains. Au-delà d'une masse de deux grammes, on constate une saturation sans doute due à la formation de multicouches de grains.

La Fig. 2 présente l'étalonnage obtenu à partir de la mesure de la surface apparente occupée par les grains. On constate que la plage de linéarité est beaucoup plus restreinte et que la courbe présente une allure paradoxale puisque la mesure décroît lorsque la masse de l'échantillon augmente. Ceci est dû à une difficulté de la méthode de mesure qui exclut dans le comptage des particules situées en limite de la zone observée. Or, lorsque la masse augmente, les particules peuvent se toucher, ce qui a priori n'a guère d'importance car la surface apparente est égale à la somme de la surface des deux particules, mais, si des particules se touchent, le système considère que ce lot constitue une seule particule, et, si ce lot tangente la limite de la zone d'observation, l'analyse ne prendra pas en compte ce lot de particules. Ceci explique

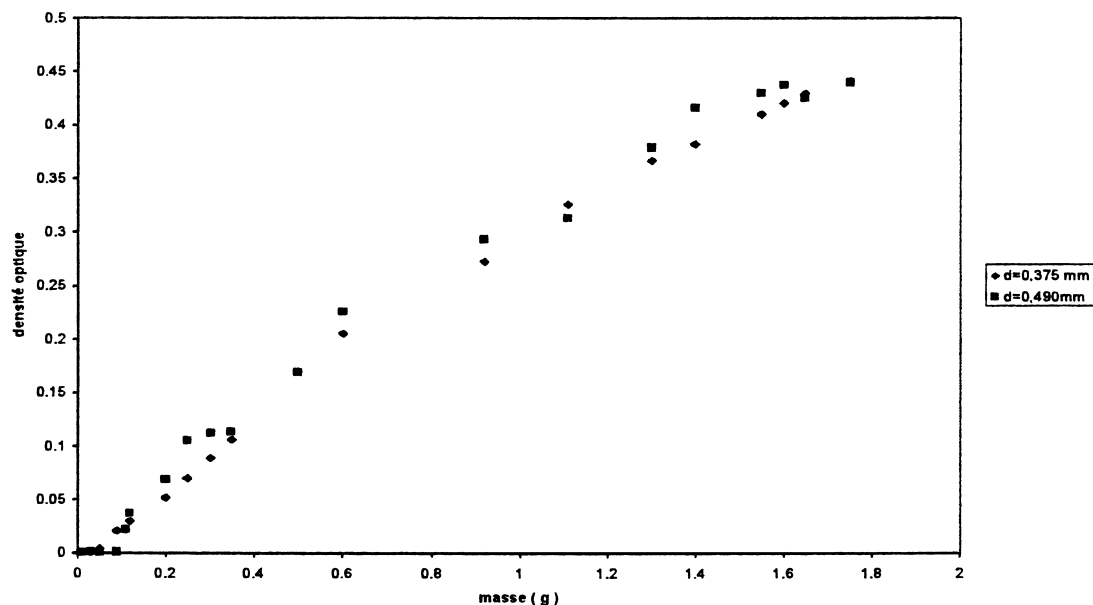


Fig. 1. Evolution de la densité optique mesurée en fonction de la masse de solide injecté.

le comportement paradoxal de la mesure qui est connu en analyse d'image sous le vocable "border kill".

La Fig. 3 représente l'étalonnage obtenu à partir du comptage des particules. On constate que la plage de validité est aussi plus restreinte et on assiste à un comportement identique à celui observé précédemment. Ceci est dû au fait que lorsque deux particules se touchent, la méthode est incapable de les différencier et considère que les deux particules ne font qu'un. Ainsi en augmentant la masse de l'échantillon, la méthode détecte un nombre de moins en moins élevé de particules.

En conclusion, c'est la méthode par absorption lumineuse qui offre la plus grande plage de validité. De plus, il n'est pas nécessaire de posséder un système sophistiqué d'analyse d'image puisque la méthode reste valable avec un système conventionnel d'absorption lumineuse.

Partant de cette constatation, l'idée est venue d'examiner si cette propriété ne pouvait pas s'étendre directement à une suspension de particules solides dans un gaz et donc de réaliser des mesures en ligne des "concentrations" de particules dans un gaz; c'est l'objet de la seconde méthode.

3. Méthode par absorption de la lumière

3.1. Aspect expérimental

Un réacteur à lit transporté horizontal (longueur: 1,6 m; diamètre: 5 cm) a été utilisé afin de vérifier la validité de la méthode.

Les cellules de mesures (décrites sur la Fig. 4) ont été placées à l'entrée et à la sortie du réacteur. Celles-ci sont

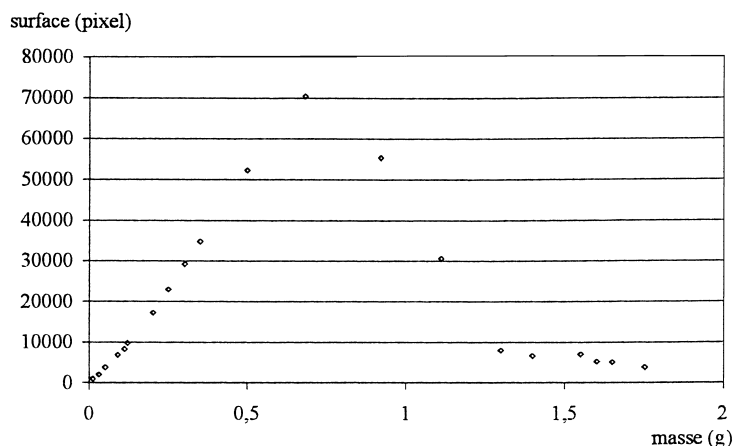


Fig. 2. Evolution de la surface mesurée (pixel) en fonction de la masse de solide injecté.

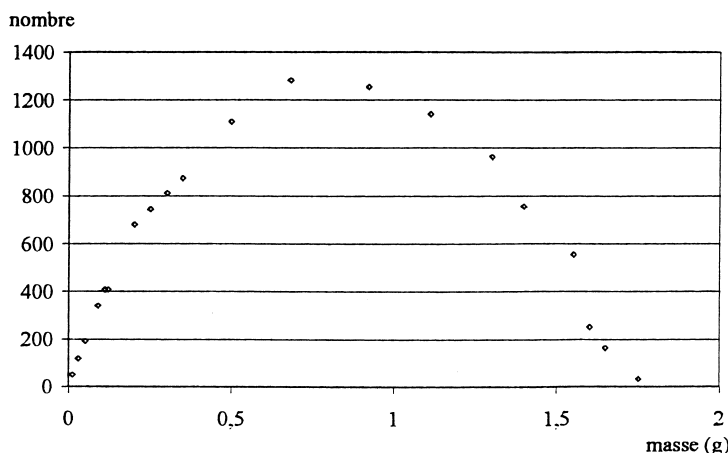


Fig. 3. Evolution du nombre de particules détectées en fonction de la masse de solide injecté.

composées de hublots en quartz placés de part et d'autre de la conduite de diamètre 50 mm. En face d'un des deux hublots on trouve une lampe spectrale mono raie à 253,7 nm émettant une intensité de 275 mW/cm² à une distance de 20 cm et alimentée par une tension de 1600 V. Derrière le second hublot est fixée une photo diode silicium possédant une réponse spectrale de 200 à 400 nm. Sa surface active est un cercle de 2,5 mm de diamètre et l'incidence maximale est de 10 mW/cm². Elle fournit une tension de sortie proportionnelle à l'intensité lumineuse de 0 à 2 V.

Le fait d'utiliser un rayonnement ultra violet permet d'une part l'étude des temps de séjour de gaz à l'aide d'un traceur absorbant à cette longueur d'onde: l'ozone, d'autre part elle présente l'avantage d'être aveugle à la lumière du jour et ainsi d'éviter toutes lumières parasites. L'étude des temps de séjour de gaz peut être réalisée en présence de solide inerte transporté, ce dernier provoquant une atténuation constante du signal lumineux ce qui ne gêne pas la détection du traceur gazeux.

L'injection de solide dans le flux gazeux est réalisée grâce à un dispositif d'alimentation en particules à vis sans fin. Le

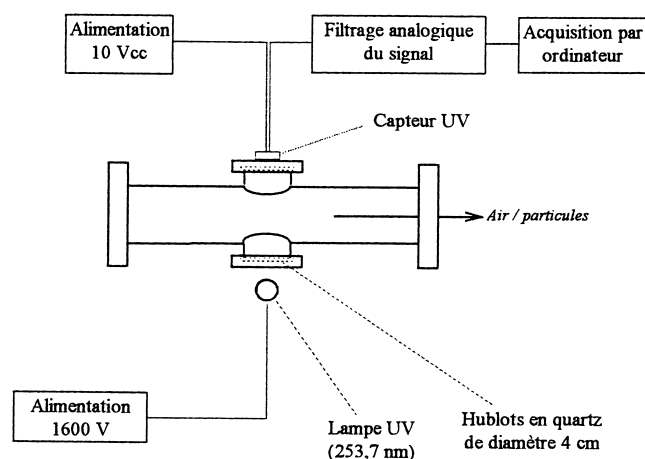


Fig. 4. Schéma des cellules de mesure.

débit de solide est étalonné par rapport à la vitesse de rotation des vis. L'injection est placée suffisamment en amont du réacteur afin d'avoir un transport de particules bien établi dans le flux gazeux. Les expériences ont été réalisées à l'aide de particules de silice ayant comme diamètre moyen 50 μm, la répartition granulométrique présentant un écart type de 30 μm.

Une grandeur C_{solide} (unités arbitraires), proportionnelle à la concentration calculée par la loi de Beer Lambert s'il s'agissait d'un gaz absorbant la longueur d'onde, a été définie:

$$C_{\text{solide}} = \ln \left(\frac{I_0}{I_T} \right) \quad (1)$$

où I_0 est l'intensité lumineuse en l'absence de solide et I_T en présence de solide transporté.

Des échelons de particules dans le courant gazeux ont été réalisés pour différents débits de gaz et de solide. Les résultats obtenus pour une cellule sont représentés sur la Fig. 5. On constate que la grandeur définie par (1) est proportionnelle au taux de solide présent dans le courant gazeux. La mesure des intensités lumineuses permet de déterminer le taux de solide présent dans le courant gazeux avec une précision de plus ou moins 15% pour des taux inférieurs à 40 g/m³. Au delà de cette valeur, la mesure devient nettement moins précise. On peut ainsi mesurer, dans ce domaine, la concentration de solide à l'entrée et à la sortie du lit transporté avec un temps de réponse extrêmement court et avoir accès à une distribution des temps de séjour du solide.

3.2. Résultats et discussion

Afin de déterminer le temps de séjour du solide, la réponse à un échelon d'entrée est calculée suivant un modèle de réacteur piston idéal. L'écart quadratique entre la réponse expérimentale et le modèle est alors minimisé suivant une méthode de régression non linéaire. L'allure des courbes DTS ainsi obtenues est représentée sur la Fig. 6.

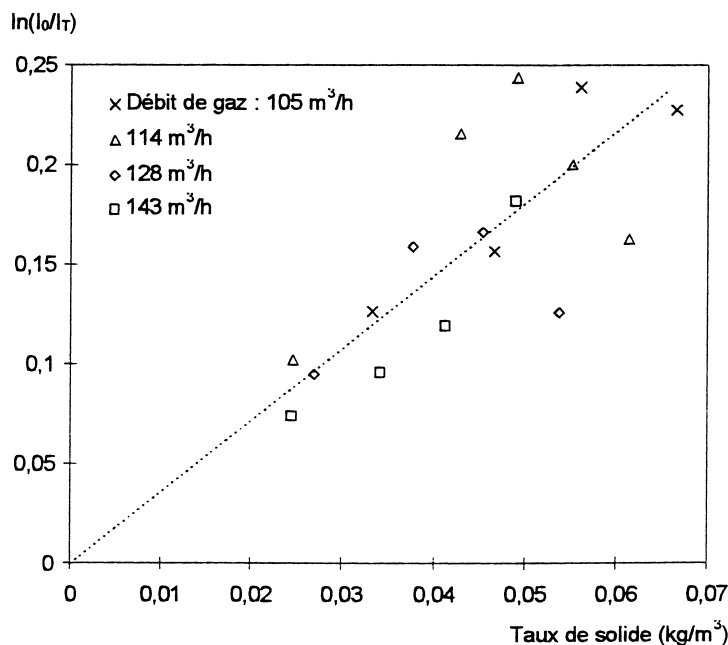


Fig. 5. Proportionnalité entre l'extinction du signal lumineux et la concentration de solide.

Les corrélations proposées par Yang [14] (Appendix A) permettent de calculer la vitesse U_p des particules transportées dans un tube horizontal. Connaissant leur vitesse et la longueur du réacteur nous pourrions en déduire leur temps de séjour théorique et le comparer à celui déterminé grâce aux mesures de distributions des temps de séjour.

La vitesse des particules dépend légèrement du débit de solide injecté. Mais, avec les faibles concentrations en solide utilisées on peut négliger ce phénomène. En effet pour un débit de $114 \text{ m}^3/\text{h}$ de gaz le temps de séjour théorique des

particules varie de 0,105 à 0,107 s lorsqu'on passe d'un débit de solide de 2 à 7 kg/h. Les temps de séjour expérimentaux ont été déterminés avec des débits en solide de 5 kg/h. Des mesures expérimentales de distribution des temps de séjour nous tirons une valeur moyenne du temps de séjour des particules que nous comparons à la valeur théorique calculée. Les résultats sont rassemblés dans la Table 1.

On constate que les essais sont reproductibles et que la valeur moyenne est en parfait accord avec les vitesses de solide transporté calculées grâce aux corrélations de Yang

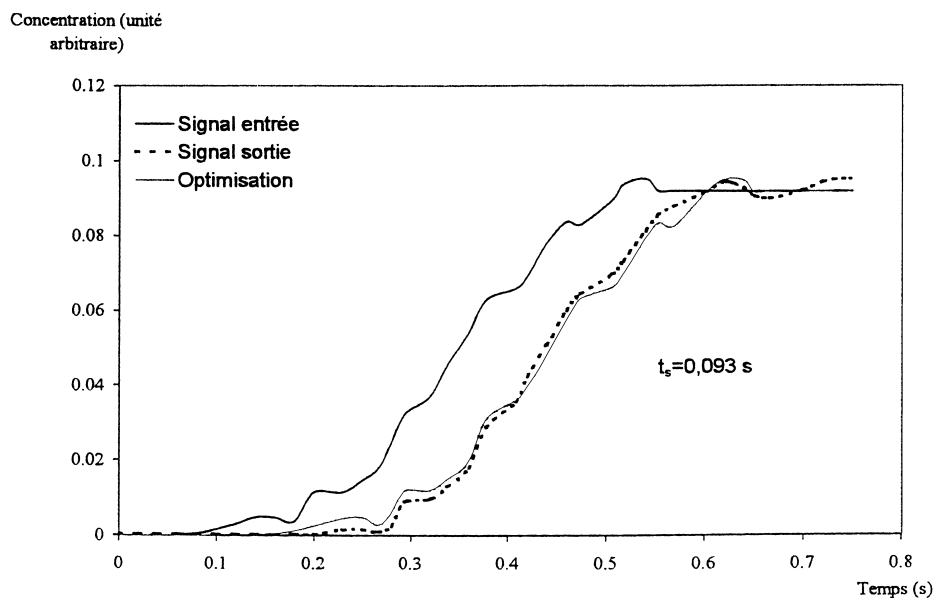


Fig. 6. Exemple de courbes DTS obtenues.

Table 1
Résultats de l'étude des temps de séjour

Q_{GAZ} (m ³ /h) à 76°C	t_s (s) DTS	t_s moyen	U_p (m/s)	t_s théo (s) L/U_p
114	0,102 0,103 0,103	0,103	15,19	0,105
128	0,101 0,095 0,093 0,087	0,094	16,98	0,094
143	0,080 0,092 0,089 0,086	0,087	18,95	0,084

[14]. L'écart type des temps de séjour déterminés expérimentalement est inférieur, dans chacun des cas, à 6 ms.

4. Conclusion

Ces deux méthodes qui viennent d'être exposées ci-dessus ouvrent de nouvelles perspectives pour l'acquisition expérimentale de mesures de distributions de temps de séjour d'un solide en écoulement pneumatique dans un gaz. La seconde méthode est de loin la plus attrayante. En effet on réalise des mesures in situ avec un enregistrement en temps réel des signaux. L'avantage d'utiliser un rayonnement ultraviolet à 253,7 nm permet non seulement d'éviter des perturbations parasites dues à la lumière du jour mais aussi de réaliser avec le même dispositif des mesures de distribution de la phase gazeuse en utilisant de l'ozone comme traceur.

La première méthode est beaucoup plus complexe, elle présente les inconvénients majeurs d'un traitement en temps différé et d'une mise en œuvre beaucoup plus lourde. Cependant elle permet de figer l'histoire des particules et d'analyser, dans le cas d'une granulométrie étalée, si le comportement des particules est dépendant de leur dimension respective.

Enfin, au niveau précision, les deux méthodes permettent d'approcher des temps de séjour inférieurs à 0,1 s avec une précision de l'ordre de quelques millisecondes.

Acknowledgements

Les auteurs adressent leurs remerciements au Centre National de la Recherche Scientifique et notamment au programme ECODEV, à l'Institut Français du Pétrole, à l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de

l'Energie, et au Groupe LHOIST pour avoir soutenu ces travaux.

Appendix A. Corrélations de Yang

$$U_p = U_f - U_t \sqrt{\frac{f_p U_p^2}{2gD}} \varepsilon^{4,7}$$

$$f_p = 0,117 \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon^3} \left[(1-\varepsilon) \frac{Re_t}{Re_p} \frac{U_f}{\sqrt{gD}} \right]^{-1,15}$$

$$\varepsilon = 1 - \frac{4W_s}{(\rho_p - \rho_f)\pi D^2 U_p}$$

avec U_t , vitesse terminale de chute définie par:

$$U_t = \frac{0,153 d_p^{1,14} g^{0,71} (\rho_p - \rho_f)^{0,77}}{\mu^{0,43} \rho_f^{0,29}}$$

pour $2 < Re_p = (\rho_f u_{st} d_p / \mu_f) < 1000$, et

$$U_t = \frac{d_p^2 (\rho_p - \rho_f) g}{18 \mu_f}$$

pour $Re_p < 0,1$.

References

- [1] J. Lédé, H.Z. Li, F. Soullignac, J. Villermaux, Chem. Eng. J. 42 (1989) 103–117.
- [2] J. Lédé, H.Z. Li, F. Soullignac, J. Villermaux, Chem. Eng. Process. 22 (1987) 215–222.
- [3] B. Gorski, C. Beyer, H. Ulrich, Isotopenpraxis 9 (1973) 282–283.
- [4] D. Huskey, Ph.D. Thesis, University of Western Ontario, London, Canada, 1990.
- [5] M. Ishida, H. Hatano, in: D. Kunii, R. Tori (Eds.), Fluidization, Engineering Foundation, Kashikojima, Japan, 1984, pp. 61–68.
- [6] M. Ishida, T. Shirai, Powder Technol. 27 (1980) 1–6.
- [7] B. Patrose, H.S. Caram, AIChE J. 28 (1982) 604–609.
- [8] E. Aubert, D. Barreateau, T. Gauthier, R. Pontier, Preprints, in: Fourth International Conference on Circulating Fluid Beds, Somerset, PA, 1993, pp. 490–495.
- [9] H. Li, Y. Xia, Y. Tung, M. Kwauk, Powder Technol. 66 (1991) 231–235.
- [10] Y. Matsuno, H. Yamaguchi, T. Oka, H. Kage, K. Higashitani, Powder Technol. 36 (1983) 215–221.
- [11] D.A. Sobocinski, B.J. Young, H.I. de Lasa, Powder Technol. 83 (1995) 1–11.
- [12] U. Hartge, Y. Li, J. Werther, Circulating Fluidized Bed Technology, Pergamon Press, Oxford, 1986, pp. 153–161.
- [13] S.C. Saxena, D. Patel, Part. Sci. Technol. 6 (1988) 145–167.
- [14] W.C. Yang, J. Powder Bulk Solids 1 (1977) 89–95.
- [15] A. Marion, Introduction aux Techniques de Traitement d'Images, Eyrolles, 1987.
- [16] E.E. Underwood, Quantitative Stereology, Addison-Wesley, Reading, MA, 1970.