



Université
de Toulouse

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Institut National Polytechnique de Toulouse (Toulouse INP)

Discipline ou spécialité :

Génie des Procédés et de l'Environnement

Présentée et soutenue par :

Mme BEATRICE KAWAS

le mardi 19 octobre 2021

Titre :

L'impression 3D au service du génie des procédés : optimisation morphologique de structures complexes aux propriétés d'usages maîtrisées

Ecole doctorale :

Mécanique, Energétique, Génie civil, Procédés (MEGeP)

Unité de recherche :

Laboratoire de Génie Chimique (LGC)

Directeur(s) de Thèse :

M. DAVID ROUZINEAU

Rapporteurs :

M. ERIC SCHAEER, UNIVERSITE LORRAINE

M. PASCAL ALIX, IFPEN

Membre(s) du jury :

MME CHRISTINE FRANCES, TOULOUSE INP, Président

M. DAVID ROUZINEAU, TOULOUSE INP, Membre

MME JOELLE AUBIN, TOULOUSE INP, Invité(e)

MME MARTINE POUX, TOULOUSE INP, Membre

MME VÉRONIQUE PUGNET, TOTAL, Membre

M. MICHEL MEYER, TOULOUSE INP, Invité(e)

*"L'important, en sciences, est moins d'obtenir des faits nouveaux,
que de découvrir de nouvelles façons de les penser."*

Sir William Lawrence Bragg

*"Ne crains rien, car je suis avec toi.
Ne promène pas des regards inquiets, car je suis ton Dieu.
Je te fortifie, je viens à ton secours.
Je te soutiens de ma droite triomphante."*

Esaïe (41:10)

Remerciements

Cette thèse de doctorat s'étant déroulée au Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse, je souhaite avant tout remercier ses directeurs, Pierre AIMAR et Pascal FLOQUET, pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire et de m'avoir offert l'opportunité de travailler dans une unité de recherche de grande qualité.

J'adresse mes sincères remerciements à mon directeur de thèse, David ROUZINEAU pour sa contribution à la réussite de cette thèse et son aide lors de la rédaction de ce mémoire. Je te remercie infiniment pour m'avoir encadré, orienté, et conseillé. Un grand merci pour ta patience, ta gentillesse, ta bonne humeur ainsi que pour la motivation que tu m'as portée à tous les stades de ce travail.

J'exprime mes remerciements et ma profonde reconnaissance à Michel MEYER pour son encadrement de qualité, son expérience professionnelle, et ses précieux conseils qui ont enrichi mes réflexions. Je te remercie également pour la confiance et la liberté que tu m'as accordées tout au long de ces années. Je suis heureuse d'avoir pu collaborer et travailler avec toi.

Je tiens ensuite à offrir mes remerciements appuyés à Martine POUX et Joëlle AUBIN qui ont accepté de participer à cette expérience et de m'accompagner dans cette thèse. Nos échanges et nos discussions au cours de cette dernière année m'ont aidé à faire avancer mes recherches et améliorer mes capacités d'analyse. Merci aussi pour vos idées et expertises qui étaient importantes pour l'avancement du projet.

J'en profite évidemment pour remercier mes stagiaires pour l'ensemble de travail qu'ils ont effectué, particulièrement Mercedes ALI avec qui j'ai partagé de très bons moments. Merci aussi à Benoit MIZZI pour son aide et son assistance pendant ces trois années.

Je remercie chaleureusement tous les professeurs, chercheurs, techniciens, et spécialistes pour leur aide et leur compétence. Je remercie spécialement Maiko RIODEL qui a été un soutien précieux auprès de la manipe au cours des derniers mois de thèse.

Je voudrais aussi remercier les rapporteurs, Eric SCHAEER et Pascal ALIX, pour leur lecture attentive de ce travail et leurs remarques constructives. Je remercie Christine FRANCES et Véronique PUGNET d'avoir accepté de faire partie des membres du jury de soutenance.

Merci à tous ceux qui ont participé de près ou de loin à l'accomplissement de ce travail : Sergio, Marco, Nada, et tous les autres. Merci encore aux doctorants qui ont partagé mes heures passées au bureau et qui ont créé une ambiance de travail agréable : Konstantina, Timothy, et Robbie.

Merci notamment à mes chers collègues et amis, Mohamad, Yousef, et Usman. Nous avons formé une vraie belle équipe et avons vécu une expérience exceptionnelle !

En dehors du labo, je remercie tous mes amis libanais et français qui ont resté à mes côtés. Merci de tout mon cœur... Votre amitié et votre soutien m'a apporté un grand réconfort.

Remerciements

Je remercie vivement mes chers parents, Michel et Marie-Antoinette, ma sœur Micha, et mon frère Antoine, pour leur soutien moral et leurs prières le long de mes études. Vos encouragements m'ont poussé à poursuivre mes ambitions.

Enfin, j'aimerais exprimer ma gratitude à la personne qui est toujours présent à mes côtés pour m'écouter, me remonter le moral, m'encourager, et me consoler. Tu as partagé tous mes bons et mauvais moments de cette aventure. Merci Joseph pour ton soutien et ton amour.

Table des matières

Remerciements.....	vi
Table des matières	viii
Liste des figures.....	xii
Liste des tableaux	xvi
Nomenclature.....	xvii
Résumé.....	xxi
Abstract	xxii
INTRODUCTION GENERALE	1
Chapitre I : Etat de l'art : Structures d'internes complexes pour des technologies de génie des procédés.....	4
1. Description et propriétés des structures	5
1.1 Les arrangements à base de plaques	6
1.1.1 Les structures à base de plaques ondulées ou tissées	6
1.1.2 Les structures à base de plaques perforées	8
1.2 Les mousses à cellules ouvertes ou fermées	9
1.3 Les structures complexes périodiques	10
1.3.1 Les structures périodiques à cellules ouvertes	12
1.3.2 Les arrangements cubiques.....	14
1.3.3 Les surfaces minimales triplement périodiques	15
1.4 Les arrangements de canaux ou de brins	15
1.4.1 Les monolithes	15
1.4.2 Les fractales	16
1.4.3 Les structures complexes 4D.....	17
1.5 Les internes hélicoïdaux	18
1.6 Autres types de structures complexes	20
2. Application des structures en génie des procédés	21
2.1 Les contacteurs gaz-liquide.....	21
2.1.1 Performances des différents garnissages	23
2.1.2 Modélisation des performances.....	29
2.2 Les internes des réacteurs oscillatoires continus	33
2.2.1 Caractérisation hydrodynamique des COBR	35
2.2.2 Performances des réacteurs avec les internes hélicoïdaux.....	36
3. La fabrication des structures	38
3.1 Impression 3D	38
3.2 Les avantages de l'impression 3D	39

Table des matières

4. Conclusion	41
Chapitre II : Matériel et Méthodes - Garnissages filaires en distillation.....	42
1. Méthodologie de travail	43
2. Conception des structures complexes	44
3. Caractérisation des structures complexes	45
3.1 Caractérisation morphologique.....	45
3.2 Caractérisation des performances	46
3.2.1 Etude hydrodynamique	46
3.2.1.1 Dispositif expérimental	46
3.2.1.2 Mesure de la perte de charge	48
3.2.1.3 Détermination des points de charge et d'engorgement	49
3.2.2 Etude de transfert de matière	50
3.2.2.1 Dispositif expérimental	50
3.2.2.2 Mesure de la HEPT	50
3.2.2.3 Calcul de la HEPT	52
3.2.2.4 Influence du diamètre de la colonne.....	53
4. Modélisation des performances	54
4.1 Analyse dimensionnelle	54
4.2 Identification de la constante et des exposants	56
5. Optimisation multicritère	56
5.1 Epsilon contrainte	57
5.2 Goal programming	58
5.3 I-MODE	58
6. Conclusion	61
Chapitre III : Performances des garnissages filaires en distillation	62
1. Etude du garnissage Tetraspline	63
1.1 Géométrie des internes	63
1.2 Fabrication des internes	64
1.3 Les caractéristiques géométriques.....	66
2. Résultats.....	67
2.1 Résultats expérimentaux	67
2.1.1 Pertes de charge et vitesse à l'engorgement	67
2.1.2 Capacité en transfert de matière	69
2.2 Corrélations.....	70
2.2.1 Perte de charge à sec.....	70
2.2.2 Perte de charge pour un système diphasique à contre-courant.....	75
2.2.3 Vitesse à l'engorgement	82

Table des matières

2.2.4 HEPT	83
2.3 Interprétation des phénomènes d'écoulement.....	84
2.4 Optimisation morphologique.....	87
2.4.1 Les objectifs	87
2.4.2 Les contraintes.....	87
2.4.3 Résultat final.....	88
2.4.3.1 Fonctions objectives : Vitesse à l'engorgement et HEPT	88
2.4.3.2 Fonctions objectives : Perte de charge et HEPT.....	90
3. Conclusion	92
Chapitre IV : Performances des internes hélicoïdaux dans un réacteur oscillatoire continu.....	93
1. Introduction	94
2. Matériel et méthodes.....	96
2.1 Dispositif expérimental.....	96
2.2 Plan d'expériences.....	98
2.3 Présentation de la géométrie des internes hélicoïdaux	100
2.4 Analyse et interprétation d'images	103
2.4.1 Présentation des approches	103
2.4.2 Analyse des images.....	105
2.4.2.1 Les opérations arithmétiques.....	105
2.4.2.2 Le seuillage	105
2.4.3 Interprétation des images	106
2.4.3.1 Identification des zones de mélange	106
2.4.3.2 Evaluation de la qualité du mélange.....	108
2.4.3.2.1 Dispersion par rapport à une concentration parfaitement mélangée. 108	
2.4.3.2.2 Détermination du pourcentage de mélange	109
3. Résultats.....	111
3.1 Analyse qualitative	111
3.1.1 Influence de la géométrie.....	111
3.1.1.1 Influence du diamètre du ruban.....	112
3.1.1.2 Influence de la largeur du ruban	113
3.1.1.3 Influence du pas.....	114
3.1.1.4 Conclusion.....	115
3.1.2 Influence des conditions opératoires	115
3.1.2.1 Influence de l'amplitude	115
3.1.2.2 Influence de la fréquence.....	116
3.1.2.3 Influence de la viscosité du fluide	117
3.1.2.4 Conclusion.....	118

Table des matières

3.1.3 Rapport entre l'amplitude et le pas	118
3.2 Analyse quantitative.....	119
3.2.1 Identification des zones de mélange	119
3.2.2 Evaluation de la qualité du mélange.....	124
3.2.2.1 Dispersion par rapport à une concentration parfaitement mélangée.....	124
3.2.2.2 Détermination du pourcentage de mélange	125
4. Conclusion	130
CONCLUSION GENERALE	131
Annexes.....	135
Annexe A : Propagation des incertitudes pour l'erreur absolue de ε	136
Annexe B: Photo des pilotes au LGC.....	137
Annexe C : Le code de Matlab adopté pour le traitement des données brutes de la perte de charge	140
Annexe D : Estimation des paramètres avec la régression multilinéaire	142
Annexe E : La géométrie des Tetrasplines	143
Annexe F : Analyse dimensionnelle pour prédire les différentes corrélations	146
F.1 Corrélation de la perte de charge d'un garnissage à sec	146
F.2 Corrélation de la perte de charge pour un système diphasique à contre-courant ..	147
F.3 Corrélation de la vitesse à l'engorgement.....	148
F.4 Corrélation de la HEPT.....	149
Annexe G : Les diamètres hydrauliques du nombre de Reynolds gaz et liquide.....	150
Annexe H : Les essais expérimentaux réalisés avec les rubans hélicoïdaux.....	153
Annexe I : Les codes de Matlab adoptés pour le traitement d'images.....	155
Annexe J : La méthodologie appliquée pour établir les courbes d'étalonnages des niveaux de gris	157
Références Bibliographiques	159

Liste des figures

Figure I.1: Les différents types de structures à géométrie complexe	5
Figure I.2: Le principe de la géométrie des structures à base de plaques ondulées (Brunazzin et Paglianti, 1997)	6
Figure I.3: Les mousses à cellules (a) : fermées, (b) : ouvertes (Zhou, 2006)	9
Figure I.4: Les mousses à cellules ouvertes pour trois différentes tailles de pores (Lévêque, 2010) (a) : 5 PPI, (b) : 20 PPI, (c) : 40 PPI	9
Figure I.5: Exemples de structures lattices (a) : La structure cubique simple (Ambrosetti, et al., 2020), (b) La structure diamant (Lämmermann et al., 2018), (c) : La cellule de Kelvin (Lämmermann et al., 2018), (d) : La structure cubique à corps centré (Jin, et al., 2019), (e) : La structure cubique à faces centrées (Jin, et al., 2019), (f) : La structure à géométrie octaédrique (Nazir, et al., 2019), (g) : La surface minimale gyroïde (Chen, et al., 2019), (h) : La surface minimale de Neovius (Chen, et al., 2019), (i) : La surface minimale Primitive de Schwarz (Chen, et al., 2019), (j) : La surface minimale de Fischer Koch CY (Al-Ketan et al., 2017), (k) : La surface minimale Diamant de Schwarz (Al-Ketan et al., 2017).....	11
Figure I.6: Les trois modèles principaux d'arrangements cubiques (Dolamore et al., 2018) (a) : structure cubique simple, (b) : cubique à corps centré, (c) : cubique à faces centrées	14
Figure I.7: Exemples de structures monolithiques (a) : (Stuecker et al., 2004), (b) : (Zhao et al., 2008), (c) : (Tubio et al., 2016), (d) : (Azuaje et al., 2017)	16
Figure I.8: Exemples de fractales (Ullah et al., 2021) : (a) : les ramifications des branches, (b) : l'hippocampe, (c) : la feuille de fougère, (d) (e) (f) (g) (h) : les flocons de neige, (i) : le tapis de Sierpinski.....	16
Figure I.9: (a) : Super X-Pack (Parkinson, 2000), (b) : un distributeur liquide (He et al., 2018), (c) (d) (e) (f) : des échangeurs de chaleur (Chen et Cheng, 2002) (Pence, 2010) (Wang et al., 2019).....	17
Figure I.10: La structure complexe Sepcarb® 4D (Gornet, 2008)	17
Figure I.11: Les différentes géométries des internes hélicoïdaux (a) : fil hélicoïdal (McDonough et al., 2017), (b) : ruban hélicoïdal (Phan et al., 2011), (c) : double ruban hélicoïdal (Mazubert et al., 2016), (d) : fil hélicoïdal et une tige centrale (McDonough et al., 2019a), (e) : ruban hélicoïdal et une tige centrale (Abdul Rahim et al., 2020), (f) : ruban hélicoïdal alterné (Mazubert et al., 2016)	18
Figure I.12: Les différents types de contacteurs gaz-liquide (Roizard et al., 1997).....	22
Figure I.13: Exemples de garnissages (a) : vracs, (b) : structurés (Mackowiak, 2010).....	23
Figure I.14: Une comparaison de la perte de charge et de la HEPT entre (a) et (b) : le Mellapak 250Y (45°) et 250X (60°) (Chemtech, 2010), (c) et (d) : le Montzpak B1-250 (45°) et B1-250.60 (60°) (Fair et al., 2000)	25
Figure I.15: Le principe de la structure MellapakPlus (Chemtech, 2010)	26
Figure I.16: Une comparaison entre les pertes de charge du (a) : Mellapak 250Y et MellapakPlus (Brunazzin et Paglianti, 1997), (b) : Montzpak B1-250 et Montzpak B1-250 Type M (Montz, 2010)	26
Figure I.17: Une comparaison de la distribution du liquide entre (a) : un garnissage à base de plaques classique et (b) : la nouvelle structure de Li et al. (2012).....	27
Figure I.18: Une comparaison des performances des mousses céramiques et des garnissages Sulzer Chemtech (Lévêque, 2010)	28
Figure I.19: Une comparaison des pertes de charge entre 3 structures différentes (Bolton et al., 2019).....	28

Liste des figures

Figure I.20: Certaines corrélations d'évaluation de perte de charge (en Pa/m) (Kawas et al., 2021b).....	29
Figure I.21: Certaines corrélations d'évaluation de la vitesse à l'engorgement (en m/s) et l'efficacité de séparation (HEPT en m) (Kawas et al., 2021b).....	30
Figure I.22: Les valeurs de ϕ en fonction de la forme des cellules des mousses (Inayat et al., 2016).....	30
Figure I.23: Le coefficient de résistance en fonction du nombre de Reynolds du gaz pour Montzpak et Mellapak (Mackowiak, 2010).....	31
Figure I.24: La corrélation graphique de Lobo (Takahashi et Fujita, 1967).....	32
Figure I.25: Le réacteur oscillatoire continu développé par NiTech Solutions Ltd (Nitech Solutions, 2019).....	33
Figure I.26: Les différents types des réacteurs oscillatoires continus.....	34
Figure I.27: La génération des tourbillons dans un COBR avec un interne hélicoïdal (Ahmed et al., 2017).....	34
Figure I.28: Les internes hélicoïdaux fabriqués en acier inoxydable (Phan et Harvey, 2011).....	36
Figure I.29: Les internes des COBR adoptés dans l'étude de McDonough et al. (2019b).....	37
Figure I.30: Nombre de publications sur l'impression 3D au service du génie des procédés pour les années 2011 à 2018 (Kalsoom et al., 2018).....	40
Figure II.1: La méthodologie adoptée pour l'optimisation morphologique des structures complexes.....	44
Figure II.2: Schéma du pilote de mesure de la perte de charge et de l'engorgement.....	47
Figure II.3: (a) : Photo des colliers de serrage, (b) : Distributeur liquide en 3D.....	48
Figure II.4: Perte de charge pour un système diphasique en fonction du temps.	48
Figure II.5: Représentation de la perte de charge en fonction des débits gaz et liquide.....	49
Figure II.6: Schéma du pilote de mesure de la HEPT.....	51
Figure II.7: L'évolution théorique de la HEPT en fonction de F.....	53
Figure II.8: Le Front de Pareto d'epsilon contrainte.....	58
Figure II.9: Méthode de calcul de I-MODE.....	60
Figure III.1: (a) : Représentation géométrique d'un élément du garnissage, (b) : Garnissage TS.....	63
Figure III.2: Photo d'un garnissage TS imprimé en (a) : polyamide par Materialise, (b) : acier inoxydable par Prismadd.....	64
Figure III.3: Comparaison de la perte de charge à sec des différents garnissages pour : (a) et (b) : un même taux de vide théorique (0,89 et 0,91).....	68
Figure III.4: Comparaison de la perte de charge (en écoulement gaz liquide – un débit liquide de $26 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ et un système eau/air) des différents garnissages pour : (a) : une même surface spécifique théorique, (b) et (c) : un même taux de vide théorique (0,89 et 0,91).....	68
Figure III.5: Comparaison de la HEPT des différents garnissages (pour un système cyclohexane/n-heptane) pour : (a) : une même surface spécifique théorique, (b) et (c) : un même taux de vide théorique (0,89 et 0,91).....	70
Figure III.6: Courbe de parité de la corrélation évaluant la perte de charge à sec.....	72
Figure III.7: Comparaison des corrélations évaluant les pertes de charge à sec.....	74
Figure III.8 : L'épaisseur du film liquide autour d'un fil du garnissage.....	76
Figure III.9: Courbe de parité des corrélations évaluant la perte de charge pour un système eau/air à contre-courant, respectivement avant (Eq. III.8) et après le point de charge (Eq. III.9)..	78

Liste des figures

Figure III.10: Courbe de parité des corrélations évaluant la perte de charge pour un système eau/glycérol/air à contre-courant, respectivement avant (Eq. III.8) et après le point de charge (Eq. III.9).....	79
Figure III.11: Courbe de parité des corrélations évaluant la perte de charge pour un système cyclohexane/n-heptane à contre-courant, respectivement avant (Eq. III.8) et après le point de charge (Eq. III.9).....	80
Figure III.12: Comparaison des corrélations évaluant les pertes de charge pour un système diphasique (pour un débit liquide de $21,36 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$).....	81
Figure III.13: Courbe de parité de la corrélation évaluant F à l'engorgement en $\text{Pa}^{0,5}$	83
Figure III.14: Les résultats de la corrélation évaluant la HEPT	84
Figure III.15: La cartographie des régimes d'écoulement des liquides pour l'éthanol, l'eau, et un mélange de 50/50 (Dejean et al., 2020)	85
Figure III.16: La cartographie des régimes d'écoulement des liquides avec nos garnissages TS	86
Figure III.17: L'ensemble des solutions de U_F et HEPT	89
Figure III.18: L'ensemble des solutions de la perte de charge et la HEPT.....	90
Figure IV.1: Les caractéristiques géométriques d'un réacteur à couronnes ou chicanes	94
Figure IV.2: (a) : Schéma descriptif de l'installation expérimentale, (b) : Photo du pilote	97
Figure IV.3: Photos de la boîte de visualisation	98
Figure IV.4: Les caractéristiques géométriques d'un ruban hélicoïdal	99
Figure IV.5: Dessins en 3D des différents rubans hélicoïdaux adoptés dans nos études ...	101
Figure IV.6 : Dessin en 2D et en 3D de l'hélice variable (interne V).....	102
Figure IV.7 : Dessin en 3D des supports supplémentaires	102
Figure IV.8: Photo de cinq rubans hélicoïdaux imprimés en 3D par 3D PROD	103
Figure IV.9: La méthodologie d'analyse et d'interprétation d'images appliquée dans l'étude	104
Figure IV.10: Exemple d'une soustraction de deux images	105
Figure IV.11: Les images obtenues après seuillage pour l'interne R.....	106
Figure IV.12: (a) : L'image de l'interne R obtenue après seuillage, (b) : la division de l'image en 15 parties.....	107
Figure IV.13: L'évolution des pourcentages des pixels pour le système R-1	107
Figure IV.14: L'évolution de la variance en fonction de la position axiale dans le tube pour le système R-1	109
Figure IV.15: L'évolution du niveau de gris pour un : (a) : système homogène et bien mélangé, (b) : système non-mélangé	110
Figure IV.16: L'évolution de la pente en fonction du diamètre du tube (pour une seule partie verticale) pour le système R-1.	110
Figure IV.17: Les images obtenues après seuillage pour les internes F, E, O, R, B, et V ...	113
Figure IV.18: Les images obtenues après seuillage pour les internes F, H, I, M, et C	114
Figure IV.19: Les images obtenues après seuillage pour les internes H, D, I, N, A, et E ...	115
Figure IV.20: Les images obtenues après seuillage pour les internes M, H, et I	116
Figure IV.21: Les images obtenues après seuillage pour les internes D et M	117
Figure IV.22: Les images obtenues après seuillage pour l'interne F	118
Figure IV.23: Variation du pourcentage des pixels gris en fonction de la position axiale dans le tube pour 13 géométries d'internes et sous différentes conditions opératoires	120
Figure IV.24: Variation du pourcentage des pixels noirs en fonction de la position axiale dans le tube pour 13 géométries d'internes et sous différentes conditions opératoires.....	121

Liste des figures

Figure IV.25: Variation du pourcentage des pixels blancs en fonction de la position axiale dans le tube pour 13 géométries d'internes et sous différentes conditions opératoires.....	122
Figure IV.26: L'évolution de la variance en fonction de la position axiale dans le tube pour les différents essais effectués avec l'interne R	124
Figure IV.27: L'évolution de la variance en fonction de la position axiale dans le tube pour les différents essais effectués avec l'interne H, I, et M	125
Figure IV.28: L'évolution du pourcentage du mélange en fonction de la position axiale dans le tube pour un système non-mélangé et un autre parfaitement mélangé	126
Figure IV.29: L'évolution du pourcentage du mélange en fonction de la position axiale dans le tube pour les internes R, H, I, et M	128
Figure IV.30: L'évolution du pourcentage du mélange en fonction de la position axiale dans le tube pour les internes R, H, et M	129

Liste des tableaux

Tableau I.1: Une sélection de structures à base de plaques ondulées ou tissées.....	7
Tableau I.2: Une sélection de structures à base de plaques perforées.....	8
Tableau I.3: Les caractéristiques géométriques et les applications des mousses en génie des procédés.....	10
Tableau I.4: Les caractéristiques géométriques des POCS proposées dans la littérature	12
Tableau I.5: Les taux de vide et les surfaces spécifiques des trois modèles principaux d'arrangements cubiques (Nawada et al., 2017).....	14
Tableau I.6: Quelques exemples des internes hélicoïdaux proposés dans la littérature	19
Tableau I.7: D'autres géométries de structures complexes proposées dans la littérature.....	20
Tableau I.8: Une sélection de garnissages à base de plaques avec les différentes performances hydrodynamiques et de transfert de matière.....	24
Tableau I.9: Une comparaison entre deux techniques d'impression 3D et une méthode de fabrication traditionnelle.....	39
Tableau II.1: La matrice aux dimensions D	55
Tableau III.1: Les paramètres géométriques des garnissages TS (Kawas et al., 2021b).....	66
Tableau III.2: Les points d'engorgement des différents garnissages présentant la même surface spécifique théorique et le même taux de vide théorique (pour un débit liquide de $26 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ et un système eau/air).....	69
Tableau III.3: Les corrélations de la perte de charge à sec proposées dans la littérature.....	74
Tableau III.4: Comparaison entre l'eau et un mélange eau/glycérol et cyclohexane/n-heptane	75
Tableau III.5: La corrélation de la perte de charge pour un système diphasique proposée dans la littérature.....	81
Tableau III.6: Les solutions numériques d'epsilon contrainte et du goal programming pour un intervalle large et restreint sur d_{fil} et l_{fil}	89
Tableau III.7: La solution numérique du goal programming pour un intervalle large et restreint sur d_{fil} et l_{fil}	91
Tableau IV.1: Comparaison entre les deux mélanges eau/glycérol ($x_{gly} = 0,175$ et $x_{gly} = 0,325$)	96
Tableau IV.2: Les facteurs étudiés pour la caractérisation du mélange dans un COBR	99
Tableau IV.3: Les paramètres géométriques des rubans hélicoïdaux.....	101
Tableau IV.4: Une classification des internes selon les caractéristiques géométriques	112
Tableau IV.5: Résumé des résultats présentés.....	123

Nomenclature

Lettres romaines

A	Aire de la section du passage du fluide (m ²)
A _{colonne}	Section droite de la colonne (m ²)
a _{ij}	Exposant de la variable répétée
A _{ij0} , A _{ji0}	Coefficients d'interaction binaire pour le modèle de Wilson
C	Constante de la corrélation de l'analyse dimensionnelle
Cφ	Concentration des solutions d'eau/glycérol et bleu de méthylène (g/mL)
C _i , C ₁ , C ₂	Fonction objectifs pour les méthodes d'optimisation
C _i [*]	But optimal pour les méthodes d'optimisation
C _n	Concentration d'une tranche horizontale (g/mL)
C _{pm}	Concentration parfaitement mélangée (g/mL)
Cr	Paramètre dans la méthode de calcul de I-MODE
D	Matrice aux dimensions
d [*]	Diamètre adimensionnel
D _{ax}	Coefficient de dispersion axiale (m ² /s)
D _{COBR}	Diamètre du réacteur oscillatoire continu (m)
d _{fil}	Diamètre réel du fil (m)
D _{gar}	Diamètre d'un seul garnissage (m)
d _{hélice}	Diamètre de l'interne hélicoïdal (m)
d _{hg}	Diamètre hydraulique du gaz (m)
d _{h1}	Diamètre hydraulique du nombre de Reynolds liquide (m)
d _{orifice}	Diamètre de l'orifice (m)
d _p	Diamètre de particule (m)
d _s	Diamètre de pont (m)
d _{so}	Diamètre de la section ouverte dans le calcul du degré de vide surfacique (m)
d _w	Diamètre du fil théorique (m)
e	Epaisseur du film liquide calculé par Nusselt (1916) (m)
e _{chicane}	Epaisseur des chicanes (m)
e _{hélice}	Epaisseur de l'interne hélicoïdal (m)
e _i	Exposants des nombres adimensionnels
f	Fréquence des pulsations (Hz)
F	Paramètre dans la méthode de calcul de I-MODE
F _F	Facteur F à l'engorgement (Pa ^{0,5})
f _{gp}	Fonction du <i>goal programming</i>
G	Débit massique unitaire de gaz (kg/s.m ²)
G _p	Nouvelle population (I-MODE)
g	Accélération de la gravité (9,8 m/s ²)
H	Hauteur d'un seul garnissage (m)
h	Rétention liquide (%)
Hg _{h,1} , Hg _{h,2}	Nombre de Hagen pour un système diphasique : avant et après le point de charge
Hg _{sec}	Nombre de Hagen à sec

Nomenclature

Inox316L	Acier inoxydable
K	Coefficient de l'effet de la paroi (Mackowiak, 2010)
L	Débit massique unitaire de liquide (kg/s.m ²)
l_b	Espacement des chicanes (m)
l_c	Longueur de capillaire (m)
l_{fil}, l_1, l_2	Longueurs des fils (m)
L_{COBR}	Longueur du réacteur oscillatoire continu (m)
m	Nombre des grandeurs physiques
m_1	Poids du garnissage sec (kg)
m_t	Masse totale de l'échantillon (kg)
N	Taille de la population initiale (I-MODE)
n	Nombre de plateau
n_d	Nombre des dimensions fondamentales
n_{fil}	Nombre de fil par section de garnissage (#/m ²)
NG	Niveau de gris
n_{th}	Nombre de tranches horizontales
p	Pas de l'interne hélicoïdal (m)
P_m	Périmètre mouillé (m)
P	Pente ou gradient de concentration radial
PA12	Polyamide
Pe	Nombre de Péclet
q_1	Débit linéique (m ² /s)
$Q_{par\ fil}$	Débit liquide par fil (m ³ /s)
Q_{total}	Débit liquide (m ³ /s)
Re_g	Nombre de Reynolds gaz
Re_{gF}	Nombre de Reynolds du gaz à l'engorgement
Re_l	Nombre de Reynolds liquide
Re_{net}	Nombre de Reynolds net
Re_o	Nombre de Reynolds oscillatoire
r_h	Rayon hydraulique (m)
r_{fil}	Rayon réel du fil (m)
S	Valeur seuil
S_{BL}	Echantillon liquide en pied de la colonne de distillation
$S_{géo}$	Surface spécifique (m ² /m ³)
St	Nombre de Strouhal
S_{TL}	Echantillon liquide en tête de la colonne de distillation
T	Température (°C)
TL	Taille de la liste tabou
TR	Distance liée à la liste tabou
U_F	Vitesse du gaz à l'engorgement (m/s)
U_{gaz}	Vitesse du gaz (m/s)
\bar{U}_{gaz}	Vitesse moyenne du gaz (m/s)
u_i	Nouvelle solution (I-MODE)
U_{liq}	Vitesse du liquide (m/s)
U_{net}	Vitesse du fluide (m/s)
\bar{U}_{net}	Vitesse moyenne du fluide (m/s)

Nomenclature

$V_{i,non-rep}$	Variable non répétée
$V_{j,rep}$	Variable répétée
V_{sol}	Volume du garnissage (m^3)
We	Nombre de weber
x_{COBR}	Position axiale dans le tube (m)
x_{gly}	Fraction molaire du glycérol
x_i	Une solution de I-MODE
x_n	Fraction molaire liquide du plateau n
x_o	Amplitude des pulsations (m)
x_w	Fraction molaire au résidu
y_n	Fraction molaire vapeur du plateau n

Lettres grecques

α	Degré de vide surfacique (<i>free dimensionless area</i>)
α_l	Paramètre dans le calcul du débit linéique pour l'épaisseur de Nusselt (1916)
γ	Tension superficielle du liquide (N/m)
$\delta_{cellule}$	Diamètre de pores (μm)
Δ	Constante dans la méthode d'epsilon contrainte
Δl	Ecart fixé pour une image numérique
$\Delta P/\Delta Z$	Perte de charge par unité de hauteur de garnissage (Pa/m)
$(\Delta P/\Delta Z)_{h,1}$	Perte de charge par unité de hauteur de garnissage d'un système
$(\Delta P/\Delta Z)_{h,2}$	diphasique : avant et après le point de charge (Pa/m)
$(\Delta P/\Delta Z)_{sec}$	Perte de charge par unité de hauteur de garnissage sec (Pa/m)
ε	Taux de vide
Θ_1, Θ_2	Angles des arêtes avec la verticale ($^\circ$)
λ	Conductivité thermique (W/m.K)
μ_f	Viscosité dynamique du fluide (Pa.s)
μ_{gaz}	Viscosité dynamique du gaz (Pa.s)
μ_{liq}	Viscosité dynamique du liquide (Pa.s)
π_{cible}	Variable cible
π_i	Nombres adimensionnels
ρ_f	Masse volumique du fluide (kg/m^3)
ρ_{gaz}	Masse volumique du gaz (kg/m^3)
$\rho_{Inox316L}$	Masse volumique de l'acier inoxydable (7960 kg/m^3)
ρ_{liq}	Masse volumique du liquide (kg/m^3)
ρ_{PA}	Masse volumique du polyamide (950 kg/m^3)
σ_V	Variance
τ	Tortuosité
ϕ	Constante pour décrire la forme des cellules (Inayat et al., 2016)
$\phi(x)$	Fonction dans le calcul du débit linéique pour l'épaisseur de Nusselt (1916)
ψ	Coefficient de résistance (Mackowiak, 2010)
ψ_v	Rapport de vitesses
Ω	Constante dans la méthode d'epsilon contrainte

Abréviations

AD	Analyse dimensionnelle
CAO	Conception Assisté par Ordinateur
CCC	Structure cubique à corps centré
CCS30	Logiciel <i>Control Center Series 30</i>
CFC	Structure cubique à faces centrées
CFD	<i>Computational Fluid Dynamics</i>
COBR	<i>Continuous Oscillatory Baffled Reactors</i>
CPI	Nombre de cellules par pouce (<i>Cells Per Inch</i>)
CS	Structure cubique simple
CSTR	Réacteurs agités montés en série
FA	Fabrication additive
FDM	Dépôt de filament fondu
FRI	Fractionation Research Inc.
GP	Grandeurs physiques
HEPT	Hauteur Equivalente à un Plateau Théorique (m)
I-MODE	Integrated Multi-Objective Differential Evolution
IP	Intensification des procédés
LGC	Laboratoire de génie chimique
M250Y	Mellapak 250Y
MNG	<i>Maximum number of generation</i>
NET	Nombre d'Etages Théoriques
PFR	<i>Plug flow reactor</i>
POCS	Structures périodiques à cellules ouvertes (<i>Periodic Open Cellular Structure</i>)
PPI	<i>Pores Per Inch</i>
SLA	Stéréolithographie
SLM	Fusion sélective par laser
SLS	Frittage sélectif par laser
SRP	Separation Research Program
STL	<i>Standard Tessellation Language</i>
TPMS	Surface minimale triplement périodique
TS	Tetraspline

Résumé

Ces travaux de thèse apportent une contribution à la problématique de la conception de nouveaux objets de génie des procédés réalisés par fabrication additive. Plus particulièrement, une méthode pour la conception d'internes structurés complexes aux propriétés d'usage maîtrisées a été proposée. Des structures innovantes à géométrie complexe, ayant des propriétés géométriques et morphologiques intéressantes, pour des applications de mélange et de séparation ont été conçues, produites, caractérisées et modélisées. Ainsi, un garnissage à base de fils de section cylindrique est développé pour des applications en tant que contacteur gaz-liquide, alors qu'un ruban hélicoïdal est conçu pour des réacteurs oscillatoires continus. Dans un premier temps, différentes configurations ont été imprimées et étudiées d'un point de vue expérimental en modifiant les propriétés géométriques des structures, puis, des méthodes de caractérisation ont été appliquées sur ces internes pour mesurer leurs performances (capacité et efficacité en transfert de matière ou pourcentage du mélange). Dans un second temps, des travaux de modélisation mathématique, en se basant sur les données expérimentales et sur de l'analyse dimensionnelle, ont abouti à des corrélations adimensionnelles permettant de prédire les performances de ces internes en fonction des paramètres morphologiques. Enfin, des stratégies d'optimisation ont été mis en place sur la base de ces modèles afin d'être capable d'optimiser les paramètres géométriques en fonction des propriétés d'usage attendues.

Mots clés : structures 3D complexes, optimisation morphologique, fabrication additive, contacteur gaz-liquide, réacteur oscillatoire continu.

Abstract

This thesis work offers a contribution to the problem of designing new process engineering objects using additive manufacturing. More particularly, a method for the purpose-specific design of complex internals was proposed. Innovative structures, with interesting geometrical and morphological properties, for mixing and separation processes were designed, fabricated, characterized, and modeled. Thus, a packing structure, based on cylindrical wires, is developed for gas-liquid contact systems, while a sharp-edged helical baffle is designed for continuous oscillatory baffled reactors. First, different configurations were printed and studied from an experimental point of view by modifying the geometrical properties of the structures. Then, characterization methods were executed on the internals to measure their performances (capacity and mass transfer efficiency or mixing degree). Secondly, using dimensional analysis and based on the obtained experimental data, mathematical modeling was performed in order to develop dimensionless correlations describing the performances of these internals as a function of the morphological parameters. Finally, optimization strategies were conducted using the developed models to optimize the geometrical parameters according to the desired performances.

Keywords: 3D complex structures, morphological optimization, additive manufacturing, gas-liquid contactor, continuous oscillatory baffled reactor.

INTRODUCTION GENERALE

INTRODUCTION GENERALE

L'intensification des procédés (IP) est une voie d'avenir dans le domaine du génie des procédés. L'IP est une méthode qui doit aboutir à des changements drastiques dans les procédés et les équipements visant à réduire les coûts et la consommation énergétique associés au processus, augmenter la sécurité, réduire la taille des équipements en rapport avec leurs capacités de production et limiter les quantités de déchets produits. L'intensification des procédés aboutit alors à des technologies durables, moins chères, plus économes en énergie, et plus propres.

Les possibilités d'intensification sont partagées entre les équipements (réacteurs et dispositifs de séparation, de mélange, de transfert de masse et de chaleur) et les méthodes (de mesure, de contrôle, de conception, etc.) (Stankiewicz et Moulijn, 2000). Les réalisations découlant de l'IP peuvent être classées en 4 grands domaines élémentaires (Stankiewicz et al., 2019): spatial, thermodynamique, fonctionnel, temporel. Dans ces travaux de thèse, l'intensification des procédés s'inscrit dans le cadre de la conception de nouvelles structures à géométrie complexe pour des appareils de génie des procédés liés à des applications de séparation et des applications en réaction et/ou mélange. A ce titre, notre étude s'inscrit pleinement dans le domaine spatial. Un des enjeux principaux est d'optimiser morphologiquement ces nouvelles structures en introduisant des géométries innovantes afin d'améliorer l'efficacité des processus intégrés en répondant à des enjeux énergétiques, environnementaux et de performance. Parmi une variété de structures, nous nous sommes focalisés sur l'optimisation de deux structures complexes différentes, les garnissages à base de fil comme contacteurs gaz-liquide et les rubans hélicoïdaux comme mélangeurs dans les réacteurs oscillatoires continus.

La première application de notre étude concerne la réalisation des contacteurs gaz-liquide structurés innovants, ayant des propriétés géométriques et morphologiques intéressantes. Ces structures seront utilisées dans le domaine de la séparation, en particulier pour les colonnes de distillation et d'absorption. Afin d'augmenter les performances des internes, il est nécessaire de développer une structure innovante à base de fil garantissant un contact gaz liquide optimum. Le choix de cette géométrie repose sur l'idée que l'écoulement liquide sur le fil aura une surface interfaciale supérieure à la surface spécifique de l'interne (contrairement à une plaque). Les structures complexes créées visent alors à améliorer de façon drastique l'efficacité de transfert de matière, ce qui réduit la consommation énergétique des colonnes de séparation.

La deuxième application de notre étude concerne l'élaboration d'internes hélicoïdaux pour des réacteurs oscillatoires continus (*Continuous Oscillatory Baffled Reactors*, COBR). Ces réacteurs sont considérés comme des équipements d'intensification adaptés aux réactions lentes et/ou limitées par le transfert de masse et de chaleur, telles que l'estérification et la transestérification d'huiles végétales (Mazubert et al., 2015). Les structures hélicoïdales complexes créées seront introduites dans les réacteurs oscillatoires continus ; elles visent à améliorer leurs performances. Il existe plusieurs géométries d'internes hélicoïdaux ; le ruban hélicoïdal est choisi pour nos travaux. La géométrie hélicoïdale réussit à améliorer le transfert massique et à augmenter l'efficacité du mélange dans les COBR (Ahmed et al., 2018a, McDonough et al., 2019b).

Dans ce contexte, l'objectif principal du travail est d'établir un lien entre les propriétés d'usage (capacité, efficacité de séparation, degré de mélange) et les caractéristiques géométriques et morphologiques des internes complexes fabriquées par la fabrication

INTRODUCTION GENERALE

additive. Pour ce faire, une méthodologie est proposée, celle-ci se décline en 5 étapes : concevoir, fabriquer, caractériser, modéliser et enfin optimiser.

L'ensemble des travaux menés sont présentés dans quatre chapitres.

Le premier chapitre propose une étude bibliographique sur les différentes géométries d'internes complexes utilisées en génie des procédés. Un inventaire des paramètres géométriques spécifiques de chaque structure, des performances et de leurs applications est réalisé.

Le deuxième chapitre présente la méthodologie de travail adoptée pour optimiser la première structure complexe sélectionnée, les garnissages à base de fil. Les différents bancs expérimentaux utilisés pour mesurer les performances des internes conçus sont décrits ainsi que les approches de modélisation des performances et d'optimisation adoptées par la suite.

Le troisième chapitre traite les performances des garnissages filaires en distillation. Les internes étudiés sont présentés, dans un premier temps, en termes de géométrie. Avec la possibilité de la fabrication additive, le but est de réaliser des structures à géométrie complexe non réalisable à travers les techniques classiques. Dans un deuxième temps, les performances de ces structures (hydrodynamiques et de transfert de matière) sont mesurées et comparées. Enfin, une modélisation des performances et une optimisation morphologique des internes sont réalisées afin de trouver un garnissage performant en terme de capacité et d'efficacité.

Le quatrième chapitre est consacré aux structures choisies pour des applications en réaction et/ou mélange, les rubans hélicoïdaux comme internes de COBR. Après une description du pilote expérimental utilisé pour effectuer les expériences de caractérisation du mélange, les études expérimentales menées sous différentes conditions opératoires sont exposées. Puis, les caractéristiques géométriques des internes hélicoïdaux testés et imprimés en 3D sont présentées. Les approches adoptées pour l'analyse et l'interprétation des résultats sont ensuite détaillées. Enfin, les résultats des expériences sont décrits, discutés et comparés dans le but d'identifier les configurations intéressantes ayant les performances souhaitées.

Chapitre I : Etat de l'art : Structures d'internes complexes pour des technologies de génie des procédés

Ce chapitre présente une étude bibliographique sur les différents types de structures à géométrie complexe utilisés en génie des procédés. Dans la première partie, les propriétés et les paramètres géométriques spécifiques de chaque structure sont décrits. La deuxième partie s'intéresse à la présentation des performances des structures utilisées dans des applications de séparation – écoulement diphasique et dans des applications en réaction et/ou mélange. Dans la troisième partie, la méthode de fabrication additive est présentée puisqu'elle est adoptée récemment en génie des procédés pour créer ces structures.

1. Description et propriétés des structures

Le terme "structure complexe" est souvent utilisé au sens large pour décrire une structure à géométrie complexe compliquée à modéliser ou à fabriquer. Il reste difficile de donner une définition exacte de ce terme et de dégager un modèle général permettant de décrire ces structures. En génie des procédés, la définition des structures complexes ainsi que leurs caractéristiques et leurs propriétés dépend de la géométrie de ces structures. Nous allons donc citer en premier les différentes géométries des structures complexes pour pouvoir attribuer des définitions.

La Figure I.1 permet d'illustrer ces géométries, chaque type de structure complexe étant défini spécifiquement dans cette partie. Les performances de quelques structures importantes, telles que les arrangements à base de plaques ondulées ou tissées, les structures périodiques à cellules ouvertes, et les internes hélicoïdaux, les objets de notre étude, seront explicitées en partie 2.

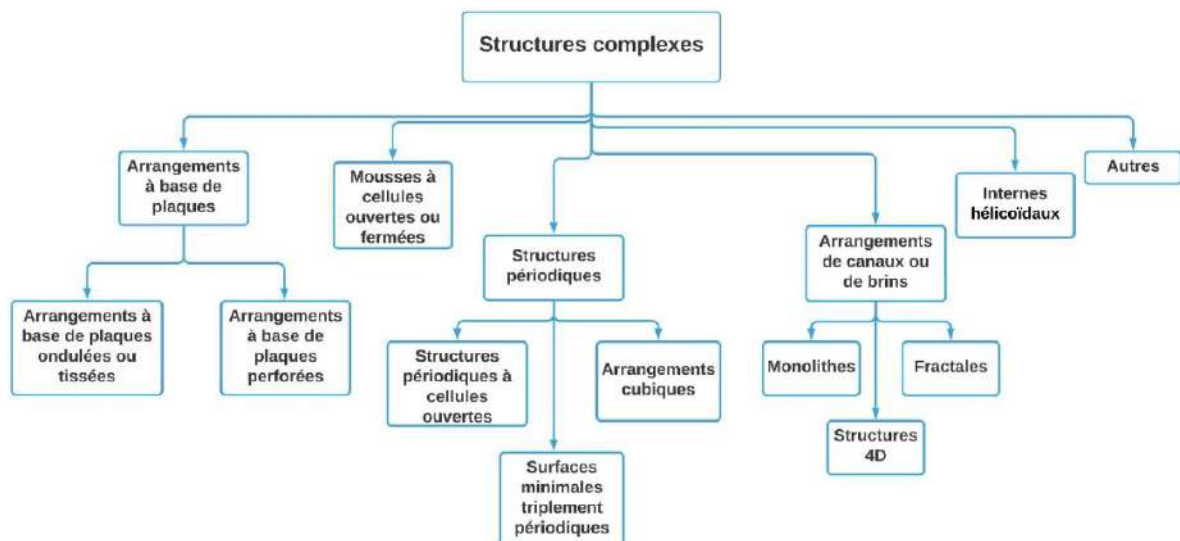


Figure I.1: Les différentes types de structures à géométrie complexe

1.1 Les arrangements à base de plaques

1.1.1 Les structures à base de plaques ondulées ou tissées

Les structures à base de plaques ondulées ou tissées sont des structures complexes constituées de tôles corruguées ou de toiles tissées disposées parallèlement les unes aux autres. Ces plaques fines, généralement de 0,1 mm d'épaisseur, sont assemblées sous forme de cylindre pour former des structures en métal, en plastique, ou en céramique. La géométrie des structures à base de plaques ondulées est illustrée en Figure I.2.

Les surfaces spécifiques usuelles de ce type d'arrangement sont comprises entre 125 et 900 m²/m³, pour des taux de vide allant de 0,5 à 0,98. Grâce à leurs caractéristiques géométriques qui sont les taux de vide et les surfaces spécifiques importantes, les structures à base de plaques ondulées ou tissées sont couramment utilisées dans des colonnes de séparation (ex : distillation, absorption).

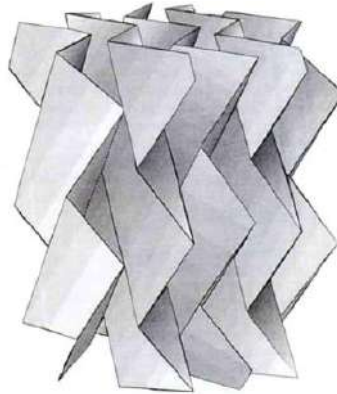



Figure I.2: Le principe de la géométrie des structures à base de plaques ondulées (Brunazzin et Paglianti, 1997)

Une sélection de structures à base de plaques avec leurs différentes caractéristiques géométriques est présentée en-dessous et en Tableau I.1 :

- les arrangements de Sulzer Chemtech, de Montz Company, et de Koch-Glitsch, respectivement, le Mellapak, le Montzpak, et le Flexipac, formés de tôles corruguées,
- les arrangements de Sulzer Chemtech, les BX et DX *gauze packing*, formés des toiles tissées métalliques,
- les arrangements proposés par Pavlenko et al. (2016), FSP - 350Y et SSP - 350Y, formés en combinant les structures des mousses céramiques et les structures à base de tôles corruguées (ex : Mellapak 250Y),
- la structure proposée par Olenberg et al. (2018) basée sur la géométrie de la structure complexe de Montz Company (Montzpak B1-250) avec des rubans tordus d'épaisseur 200 µm,
- la structure proposée par Miramontes et al. (2020) basé sur la géométrie de la structure complexe de Sulzer Chemtech (Mellapak 250Y).

Chapitre I : Etat de l'art : Structures d'internes complexes pour des technologies de génie des procédés

Tableau I.1: Une sélection de structures à base de plaques ondulées ou tissées

Modèle de structures	Caractéristiques géométriques	Photo
<p>BX gauze packing (Sulzer Chemtech)</p> <p>DX gauze packing (Sulzer Chemtech)</p>	<ul style="list-style-type: none"> $\epsilon_{BX} = 0,9$ $S_{géo(BX)} = 500 \text{ m}^2/\text{m}^3$ $\epsilon_{DX} = 0,937$ $S_{géo(DX)} = 900 \text{ m}^2/\text{m}^3$ 	
<p>Mellapak (Sulzer Chemtech)</p>	<ul style="list-style-type: none"> $\epsilon = 0,9 - 0,98$ $S_{géo} = 125 - 750 \text{ m}^2/\text{m}^3$ 	
<p>Montzpak (Montz Company)</p>	<ul style="list-style-type: none"> $\epsilon = 0,9 - 0,98$ $S_{géo} = 250 - 750 \text{ m}^2/\text{m}^3$ 	
<p>Flexipac (Koch-Glitsch)</p>	<ul style="list-style-type: none"> $\epsilon = 0,91 - 0,98$ $S_{géo} = 223 - 725 \text{ m}^2/\text{m}^3$ 	
<p>FSP - 350Y et SSP - 350Y (Pavlenko et al., 2016)</p>	<ul style="list-style-type: none"> $S_{géo} = 350 \text{ m}^2/\text{m}^3$ 	
<p>Garnissage Olenberg et al. (2018)</p>	<ul style="list-style-type: none"> $\epsilon = 0,98$ $S_{géo} = 392 \text{ m}^2/\text{m}^3$ 	
<p>Lit garni (Miramontes et al., 2020)</p>	<ul style="list-style-type: none"> Diamètre = 20,3 cm et longueur = 14,6 cm 	

1.1.2 Les structures à base de plaques perforées

Les structures à base de plaques perforées sont définies comme des couronnes ou des plaques multi-orifices réparties dans des colonnes ou des tubes d'une façon perpendiculaire à la paroi et équidistante sur toute la longueur. Ces structures se caractérisent par plusieurs paramètres géométriques comme l'espacement et l'épaisseur des plaques, le diamètre de l'orifice, le nombre d'orifices dans une plaque (toujours supérieur à 1), et le degré de vide surfacique (α). Le dernier est calculé en divisant le diamètre équivalent des orifices par le diamètre du tube équipé par les plaques.

Ce type de structures est observé dans des appareils de génie des procédés liés à des applications en réaction et/ou mélange, nommés réacteurs oscillatoires continus ou *Continuous Oscillatory Baffled Reactors* (COBR) (partie 2.2). Les réacteurs à plaques multi-orifices sont considérés comme des moyens d'intensification de procédé visant à améliorer l'efficacité des réactions lentes et limitées par le transfert de masse (exemple : la production des esters méthyliques d'huile végétale) (Soufi et al., 2017). Le Tableau I.2 montre deux exemples de structures à base de plaques multi-orifices.

Tableau I.2: Une sélection de structures à base de plaques perforées

Référence	Caractéristiques géométriques	Photo
González-Juárez et al. (2017)	<ul style="list-style-type: none"> Des plaques multi-orifices avec 3, 7, 19, et 43 orifices par plaque $\alpha = 0,25$ 	
Soufi et al. (2017) Nogueira et al. (2013)	<ul style="list-style-type: none"> Des plaques multi-orifices avec 3 orifices de diamètre 17 mm par plaque et une tige centrale de diamètre 6 mm Plaques d'épaisseur 3 mm L'espacement des plaques varie entre 50, 70, et 90 mm 	

1.2 Les mousses à cellules ouvertes ou fermées

Les mousses à cellules ouvertes et les mousses à cellules fermées (Figure I.3) sont des structures complexes non lattices, puisque leur géométrie ne se fonde pas sur une répétition d'éléments périodiques. Les mousses à cellules fermées sont caractérisées par des cellules isolées par des parois alors que les mousses ouvertes possèdent des cellules ou pores polyédriques connectés par des brins solides (Lévêque, 2010).

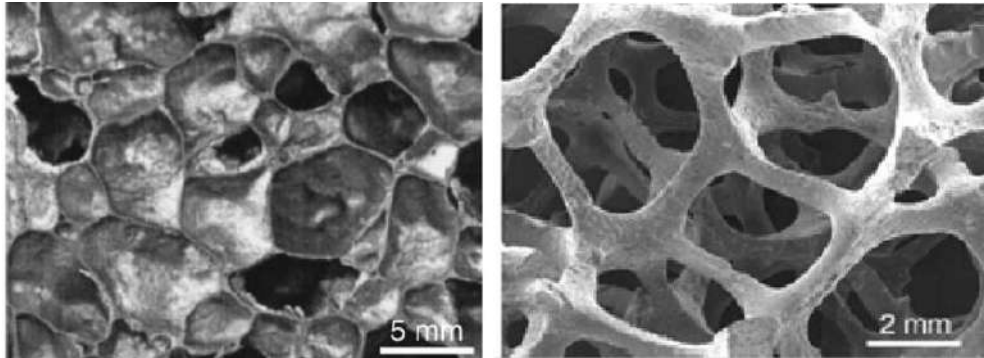


Figure I.3: Les mousses à cellules (a) : fermées, (b) : ouvertes (Zhou, 2006)

Les mousses à cellules ouvertes présentent des caractéristiques géométriques spécifiques comme par exemple, la taille des cellules ou des pores δ_{cellule} (diamètre compris généralement entre 10 μm et 10 mm), la largeur des brins solides, ainsi que le taux de vide, et la surface spécifique. La taille des pores est représentée par une dimension caractéristique mieux connue sous l'abréviation PPI (*Pores Per Inch*). Cette dimension correspond au nombre de pores ou cellules par pouce, qui est inversement proportionnel à la taille des cellules. La Figure I.4 présente trois images de mousses à cellules ouvertes pour différentes tailles de pores (Lévêque, 2010). Deux mousses métalliques 5 PPI et 40 PPI possèdent un diamètre de pores (δ_{cellule}) d'environ 5000 μm et 500 μm , respectivement.

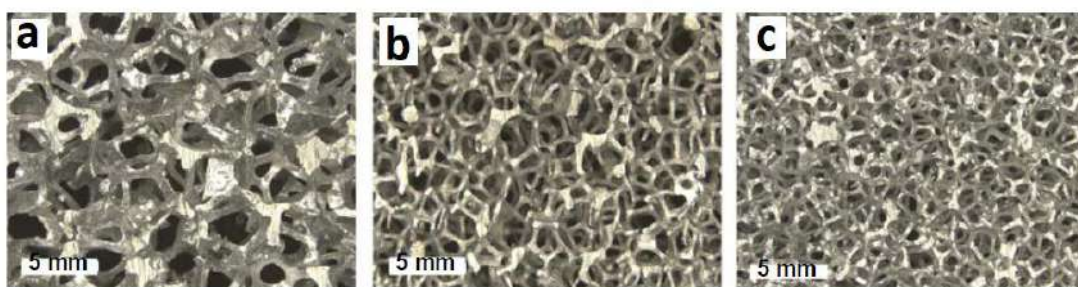
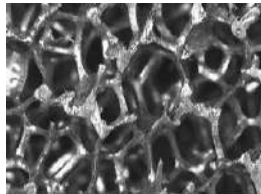
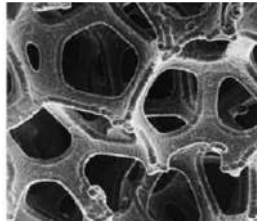



Figure I.4: Les mousses à cellules ouvertes pour trois différentes tailles de pores (Lévêque, 2010) (a) : 5 PPI, (b) : 20 PPI, (c) : 40 PPI

Ces structures complexes ont un vaste champ d'application grâce à leurs propriétés géométriques et à leurs performances thermiques et hydrodynamiques. Le Tableau I.3 présente quelques applications des mousses métalliques en génie des procédés avec leurs caractéristiques géométriques.

Les caractéristiques géométriques intéressantes des mousses (taux de vide et surface spécifique élevés) favorisent l'utilisation de ces structures complexes dans des colonnes de séparation. Lévêque et al. (2009) a été le premier à adopter les mousses métalliques en tant que contacteurs gaz-liquide (garnissages) pour des colonnes de distillation réactive à contre-courant. Toutefois, les essais expérimentaux ont démonté la faible capacité (perte de charge élevée) de ces structures (voir Partie 2.1.1).

Tableau I.3: Les caractéristiques géométriques et les applications des mousses en génie des procédés

Caractéristiques géométriques	Application	Photo
<ul style="list-style-type: none"> • Mousse d'aluminium 10 PPI • $\varepsilon = 0,892$ • $S_{géo} = 510 \text{ m}^2/\text{m}^3$ • Conductivité thermique élevée ($\lambda_{\text{aluminium}} = 150 \text{ W/m.K}$) 	Echangeur de chaleur compact (Tadrist et al., 2004)	
<ul style="list-style-type: none"> • Mousse métallique 20 et 40 PPI • $\varepsilon = 0,88$ • $S_{géo} (20 \text{ PPI}) = 200 \text{ m}^2/\text{m}^3$ • $S_{géo} (40 \text{ PPI}) = 410 \text{ m}^2/\text{m}^3$ 	Support de catalyseur pour l'oxydation du monoxyde de carbone (Chin et al., 2006)	
<ul style="list-style-type: none"> • Mousse céramique en β-SiC 5 PPI • $\varepsilon = 0,92$ • $S_{géo} = 640 \text{ m}^2/\text{m}^3$ 	Contacteur gaz-liquide (Lévêque, 2009)	

1.3 Les structures complexes périodiques

Les structures lattices sont des structures complexes de nature périodique possédant un motif géométrique élémentaire qui se répète dans l'espace. Ces structures se distinguent par des caractéristiques géométriques intéressantes, des faibles masses, et des hautes résistances mécaniques (Helou et Kara, 2018).

Dans les travaux proposés dans la littérature, la conception des structures périodiques à géométrie complexe est basée sur de nombreux motifs géométriques lattices, comme par exemple la structure cubique simple, la structure diamant, la cellule de Kelvin. Une sélection de géométrie lattice est illustrée en Figure I.5.

Chaque structure périodique possède des propriétés uniques et des caractéristiques spécifiques liées à sa conception et à sa géométrie. Ces caractéristiques sont définies par le modèle du motif géométrique élémentaire, la régularité et la répétition de ce motif, la taille et la forme des cellules, le taux de vide. En se basant sur ces propriétés, les types des structures périodiques complexes peuvent varier entre structures périodiques à cellules ouvertes, arrangements cubiques et surfaces minimales triplement périodiques. Les domaines d'application de ces structures s'étendent aussi à de nombreux secteurs d'activité, notamment dans l'aérospatiale, l'industrie automobile, l'industrie du génie des procédés, et l'industrie biomédicale (Nazir, et al., 2019).

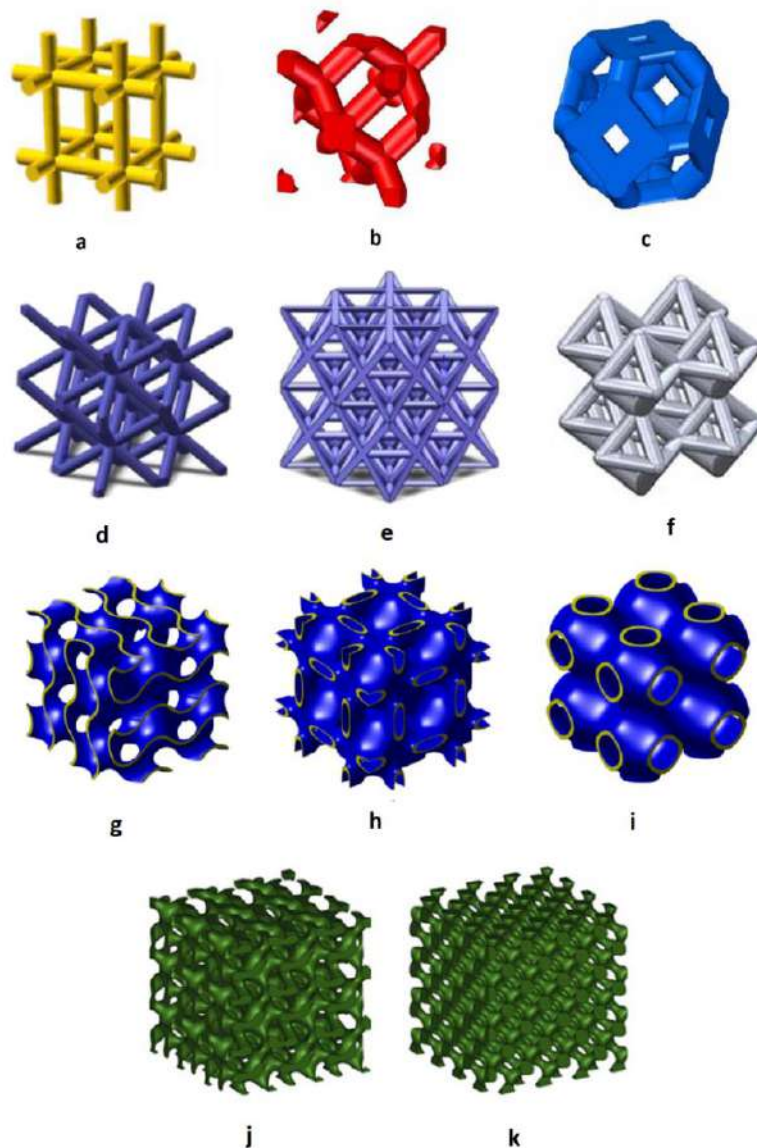


Figure 1.5: Exemples de structures lattices (a) : La structure cubique simple (Ambrosetti, et al., 2020), (b) La structure diamant (Lämmermann et al., 2018), (c) : La cellule de Kelvin (Lämmermann et al., 2018), (d) : La structure cubique à corps centré (Jin, et al., 2019), (e) : La structure cubique à faces centrées (Jin, et al., 2019), (f) : La structure à géométrie octaédrique (Nazir, et al., 2019), (g) : La surface minimale gyroïde (Chen, et al., 2019), (h) : La surface minimale de Neovius (Chen, et al., 2019), (i) : La surface minimale Primitive de Schwarz (Chen, et al., 2019), (j) : La surface minimale de Fischer Koch CY (Al-Ketan et al., 2017), (k) : La surface minimale Diamant de Schwarz (Al-Ketan et al., 2017).

1.3.1 Les structures périodiques à cellules ouvertes

Contrairement aux mousses métalliques, les structures périodiques à cellules ouvertes (POCS : *Periodic Open Cellular Structure*) sont considérées comme des structures lattices. Ces structures présentent les mêmes caractéristiques géométriques que celles décrites pour les mousses métalliques (diamètre des cellules, largeur des brins, taux de vide, et surface spécifique). La taille des cellules est aussi représentée par une dimension caractéristique qui décrit le nombre de cellules par pouce (CPI ou *Cells Per Inch*). Les différents travaux de recherche réalisés sur les POCS sont présentés en Tableau I.4. Dans ces travaux, la conception des POCS est basée sur trois motifs géométriques principaux, (a) la structure cubique simple, (b) la structure diamant, (c) la cellule de Kelvin (Figure I.5).

Ce type de structures périodiques peut être utilisé dans des applications en génie des procédés liées au transfert de chaleur et de masse (dans des colonnes de séparation/d'absorption ou comme supports de catalyseur) pour des raisons diverses :

- taux de vide élevé, et donc faible perte de charge
- surface spécifique importante / surface de contact importante
- bonne tenue mécanique et thermique

Malgré tout, seuls les mousses FTB ont été étudiés en transfert. Les autres POCS du Tableau I.4 ont été étudiés en hydrodynamique.

Tableau I.4: Les caractéristiques géométriques des POCS proposées dans la littérature


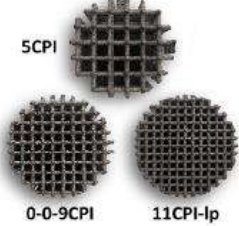

Référence	Caractéristiques géométriques	Photo
Inayat et al. (2011)	<ul style="list-style-type: none"> • La conception basée sur la géométrie de la cellule de Kelvin • Cellules de section cylindrique pour 3,5, 4,5, et 6 CPI • Des taux de vide élevés (entre 0,85 et 0,88) 	
Klumpp et al. (2014)	<ul style="list-style-type: none"> • La conception basée la géométrie de la structure cubique simple • Nombres de cellules = 5, 9, et 11 CPI • Des taux de vide compris entre 0,71 et 0,86 • Des surfaces spécifiques comprises entre 562 et 1426 m²/m³ 	 <p>5CPI 0-0-9CPI 11CPI-lp</p>
Yala (2017)	<ul style="list-style-type: none"> • Mousses FTB avec des cellules de diamètre 10 mm • Un taux de vide de 0,85 et une surface spécifique de 291 m²/m³ 	

Tableau I.4: Les caractéristiques géométriques des POCS proposées dans la littérature (suite)

Référence	Caractéristiques géométriques	Photo
Lämmermann et al. (2018)	<ul style="list-style-type: none"> • La conception basée sur la géométrie de la cellule de Kelvin et de la structure diamant • Nombres de cellules = 4,5, 6, et 8 CPI • Des taux de vide compris entre 0,67 et 0,9 • Des surfaces spécifiques comprises entre 536 et 1438 m²/m³ 	
Bolton et al. (2019)	<ul style="list-style-type: none"> • Des structures imprimées en 3D ayant des cellules de diamètres 25,4, 12,7, et 6,35 mm • Des surfaces spécifiques de 280, 564, et 1332 m²/m³ 	
Neukaeufer et al. (2019)	<ul style="list-style-type: none"> • Des taux de vide supérieurs à 0,87 • Des surfaces spécifiques supérieures à 422 m²/m³ 	
Ambrosetti, et al. (2020)	<ul style="list-style-type: none"> • La conception basée sur la géométrie de la cellule de Kelvin, de la structure diamant, et de la structure cubique simple • Nombres de cellules = 3, 4, 5, et 6 CPI • Des taux de vide entre 0,774 et 0,902 • Des surfaces spécifiques entre 165 et 775 m²/m³ 	
Do et al. (2020)	<ul style="list-style-type: none"> • La conception basée sur la géométrie de la structure diamant • Un taux de vide d'environ 0,75 • Des surfaces spécifiques comprises entre 546 et 1092 m²/m³ 	

1.3.2 Les arrangements cubiques

Les modèles cubiques les plus connus sont la structure cubique simple (CS), la cubique à corps centré (CCC), et la cubique à faces centrées (CFC) (Figure I.5). La première structure comporte des particules sur chaque sommet du cube (Figure I.6.a), tandis que la CCC et la CFC se caractérisent par la présence des particules à chaque sommet du cube avec, respectivement, le centre du cube (Figure I.6.b) ou le milieu de chaque face (Figure I.6.c).

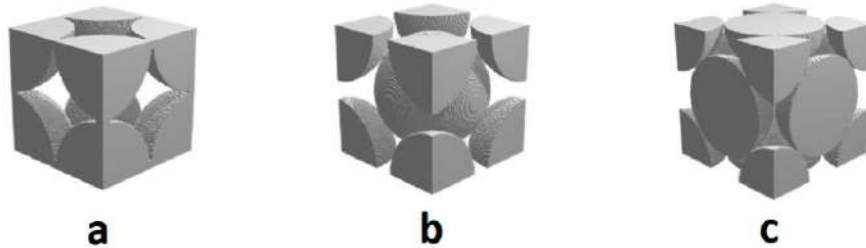


Figure I.6: Les trois modèles principaux d'arrangements cubiques (Dolamore et al., 2018) (a) : structure cubique simple, (b) : cubique à corps centré, (c) : cubique à faces centrées

Ce type d'arrangement se caractérise par des faibles taux de vide et des faibles surfaces spécifiques (Tableau I.5). L'usage des modèles cubiques dans des applications diphasiques gaz-liquide (ex : colonnes de distillation ou d'absorption) implique alors une perte de charge élevée et un faible transfert de matière, ce qui est défavorable. Pour cela, les arrangements cubiques n'ont pas été développés pour des applications en tant que contacteur gaz-liquide ; il n'existe aucune référence dans la littérature concernant ces modèles dans le cas d'un écoulement diphasique. Plusieurs modèles géométriques cubiques ont été proposés pour la chromatographie en phase liquide et gazeuse (écoulement monophasique) par Nawada et al. (2017) et Dolamore et al. (2018). Par exemple, Nawada et al. (2017) ont fabriqué et imprimé en 3D des arrangements cubiques pour une colonne de chromatographie en phase liquide de longueur 39,3 mm et de diamètre interne 18 mm.

Tableau I.5: Les taux de vide et les surfaces spécifiques des trois modèles principaux d'arrangements cubiques (Nawada et al., 2017)

Arrangement cubique	Taux de vide	Surface spécifique (m ² /m ³)
CS	0,37	8,66
CCC	0,29	9,42
CFC	0,19	9,77

1.3.3 Les surfaces minimales triplement périodiques

Une surface minimale triplement périodique (TPMS) est une surface minimale déterminée mathématiquement dans un espace euclidien de trois dimensions (Chen et al., 2019). Les premiers exemples de TPMS sont les surfaces minimales Primitives et Diamants de Schwarz (Figure I.5.k et I.5.i). D'autres exemples comprennent la surface minimale gyroïde (Figure I.5.g), la surface minimale de Neovius (Figure I.5.h) et la surface minimale de Fischer Koch CY (Figure I.5.j).

Grâce à leurs propriétés physiques et mécaniques intéressantes (ex : une perméabilité maximale à certains fluides et un rapport surface/volume élevé), les TPMS sont adoptées dans des diverses applications liées au transfert de chaleur et à l'ingénierie tissulaire (Al-Ketan et al., 2017). Elles sont fabriquées aujourd'hui à l'échelle macroscopique par les méthodes de fabrication additive.

1.4 Les arrangements de canaux ou de brins

1.4.1 Les monolithes

Les monolithes sont des structures complexes poreuses formées par l'arrangement d'un certain nombre de canaux interconnectés. Normalement, cet arrangement présente des pores de taille microscopique qui fait l'objet de limitations liées à la distribution du liquide dans le cas d'un écoulement à contre-courant. Pour cela, des travaux pour des systèmes à co-courant sont plutôt réalisés sur les monolithes microporeux, ce qui est défavorable pour les opérations de séparation (1 étage théorique par mètre maximum). De plus, les monolithes sont caractérisés par une faible capacité et un engorgement précoce. Ces limitations de performances hydrodynamiques et de transfert de matière ont orienté les études vers l'utilisation des structures monolithiques comme supports de catalyseur et ont écarté l'idée de contacteurs gaz-liquide.

De nombreux types de monolithes sont proposés dans la littérature en tant que supports de catalyseurs pour des diverses réactions chimiques. Voici quelques exemples (Figure I.7):

- Stuecker et al. (2004) ont fabriqué deux structures monolithiques/catalytiques ($\text{Ba Mn}_2\text{Al}_{10}\text{O}_{19-\alpha}$) pour la combustion catalytique du méthane.
- Zhao et al. (2008) ont adopté deux structures monolithiques/catalytiques ($\text{Ru}/\text{Al}_2\text{O}_3$ et $\text{Ru}/\text{ZrO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$) pour la réaction d'hydrogénation du benzène en cyclohexane.
- Tubío et al. (2016) ont développé un système catalytique hétérogène ($\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$) avec une structure monolithique imprimée en 3D. Le catalyseur était sur support d'alumine avec du cuivre immobilisé pour réaliser la réaction d'Ullmann.
- Azuaje et al. (2017) ont développé une structure catalytique Al_2O_3 pour la réaction de Biginelli.

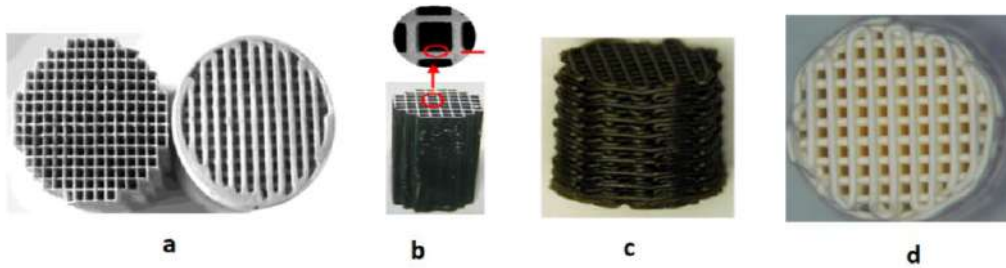


Figure I.7: Exemples de structures monolithiques (a) : (Stuecker et al., 2004), (b) : (Zhao et al., 2008), (c) : (Tubio et al., 2016), (d) : (Azuaje et al., 2017)

1.4.2 Les fractales

Les fractales sont définies comme des structures complexes présentant une autosimilarité dans leurs géométries. Ils sont considérés comme des arrangements de brins décomposés en plusieurs parties qui se répètent itération après itération en diminuant de grandeur.

Les formes fractales offrent des nouvelles perspectives dans la modélisation géométrique ; ils peuvent être modélisés à partir des objets trouvés dans la nature ou dans les organismes vivants (Ullah et al., 2021). La Figure I.8 illustre quelques exemples basés sur le principe des fractales.

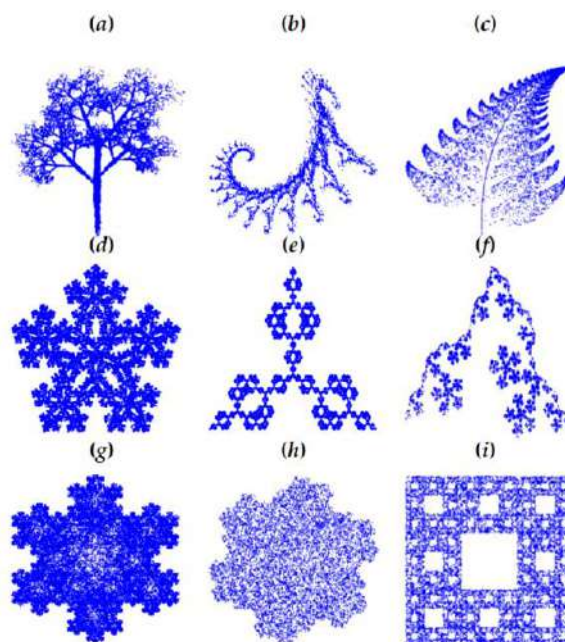


Figure I.8: Exemples de fractales (Ullah et al., 2021) : (a) : les ramifications des branches, (b) : l'hippocampe, (c) : la feuille de fougère, (d) (e) (f) (g) (h) : les flocons de neige, (i) : le tapis de Sierpinski

La modélisation de la géométrie fractale est observée dans de nombreux domaines d'application comme l'ingénierie des procédés, l'architecture, et l'ingénierie biomédicale. Dans l'ingénierie des procédés, cette géométrie a abouti au développement de nouvelles configurations de garnissages tissés (Figure I.9.a), de distributeurs liquides (Figure I.9.b), et

d'échangeur de chaleurs (Figure I.9.c, I.9.d, I.9.e, et I.9.f). Par exemple, une structure complexe nommée Super X-Pack, basée sur le concept de ramification des branches, est créée pour des applications particulières comme la distillation sous vide (Parkinson, 2000). Le Super X-Pack est un garnissage tissé formé de brins fins rassemblés en groupes ayant une surface $S_{géo}$ comprise entre 100 et 1000 m^2/m^3 .

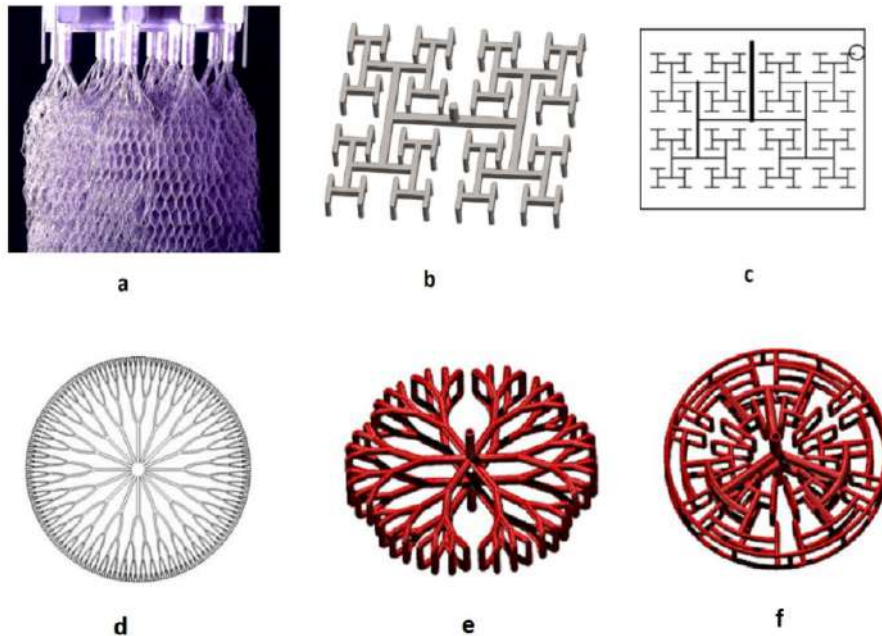


Figure I.9: (a) : Super X-Pack (Parkinson, 2000), (b) : un distributeur liquide (He et al., 2018), (c) (d) (e) (f) : des échangeurs de chaleur (Chen et Cheng, 2002) (Pence, 2010) (Wang et al., 2019)

1.4.3 Les structures complexes 4D

La structure Sepcarb® 4D est une structure composite multidirectionnelle formée de réseau structuré de canaux ouverts en carbone suivant quatre directions de l'espace (Gornet, 2008). La Figure I.10 montre cette structure complexe ; son inventaire repose sur un matériau thermo-structural utilisé dans l'industrie aéronautique. Vu ses caractéristiques géométriques, son application a été détournée en tant que contacteur gaz-liquide (Alix et al., 2011).

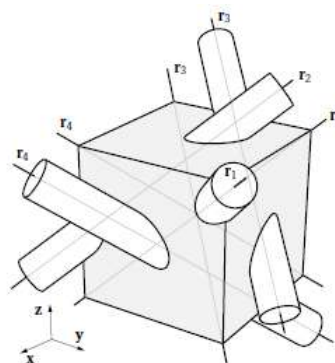


Figure I.10: La structure complexe Sepcarb® 4D (Gornet, 2008)

1.5 Les internes hélicoïdaux

Les internes hélicoïdaux sont des internes généralement conçus pour des réacteurs oscillatoires continus (COBR) (partie 2.2). Ces internes sont caractérisés par un diamètre " $d_{\text{hélice}}$ ", une épaisseur " $e_{\text{hélice}}$ ", un pas " p " (Figure I.11.a), et un degré de vide surfacique (*free dimensionless area*, α). Le pas représente la distance axiale parcourue par l'interne en un tour complet. Le degré de vide surfacique est déterminé par le rapport entre l'aire de la section ouverte et l'aire de la section du tube où l'interne est introduit:

$$\alpha = \frac{\pi d_{\text{so}}^2/4}{\pi D_{\text{COBR}}^2/4} = \frac{d_{\text{so}}^2}{D_{\text{COBR}}^2} \quad (\text{I.1})$$

avec d_{so} le diamètre de la section ouverte en m et D_{COBR} le diamètre du tube en m.

Les différentes géométries des internes hélicoïdaux peuvent varier entre fil hélicoïdal (Figure I.11.a), ruban hélicoïdal (Figure I.11.b), double ruban hélicoïdal (Figure I.11.c), fil hélicoïdal et une tige centrale (Figure I.11.d), ruban hélicoïdal et une tige centrale (Figure I.11.e), et ruban hélicoïdal alterné (Figure I.11.f). Un nombre d'études concernant ces géométries est présenté en Tableau I.6.

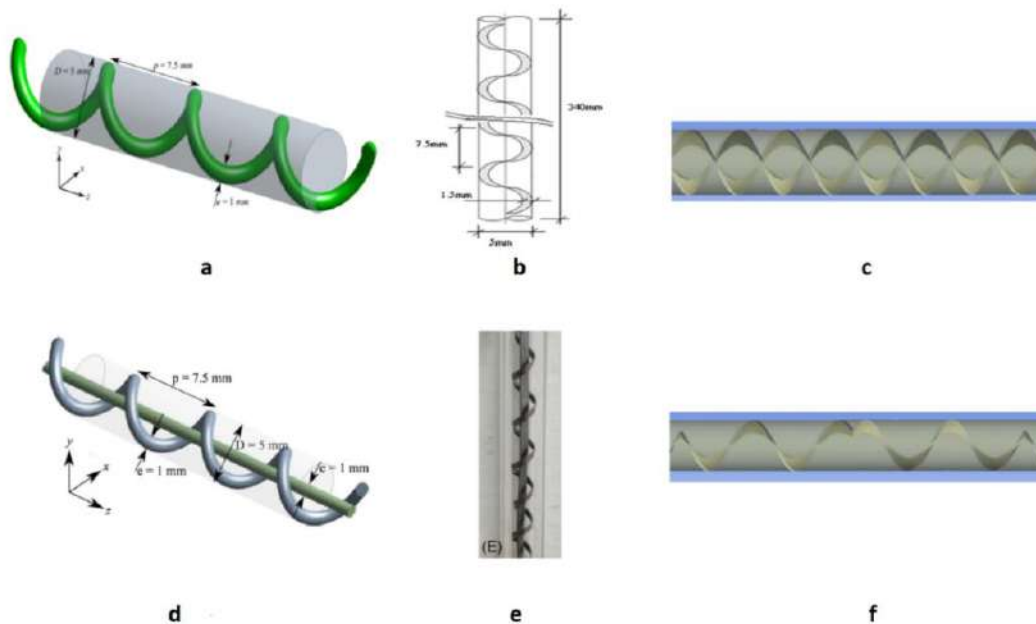


Figure I.11: Les différentes géométries des internes hélicoïdaux (a) : fil hélicoïdal (McDonough et al., 2017), (b) : ruban hélicoïdal (Phan et al., 2011), (c) : double ruban hélicoïdal (Mazubert et al., 2016), (d) : fil hélicoïdal et une tige centrale (McDonough et al., 2019a), (e) : ruban hélicoïdal et une tige centrale (Abdul Rahim et al., 2020), (f) : ruban hélicoïdal alterné (Mazubert et al., 2016)

Les internes hélicoïdaux sont recommandés pour des applications en écoulement liquide-liquide ainsi que pour des opérations de mélange, pour réaliser des réactions chimiques. L'influence des paramètres géométriques et de l'addition d'une tige centrale sur les performances des internes sera traitée en partie 2.2.

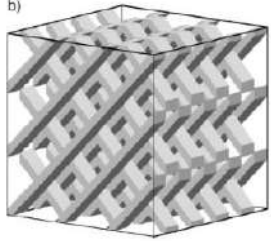

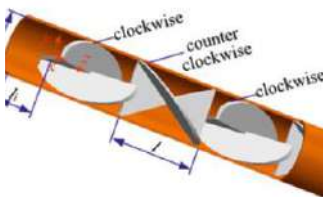
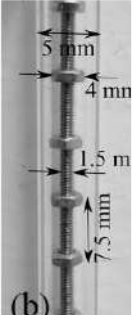

Tableau I.6: Quelques exemples des internes hélicoïdaux proposés dans la littérature

Référence	Type d'interne	$d_{\text{hélice}}$ (mm)	Pas (mm)	$e_{\text{hélice}}$ (mm)	Diamètre du tige centrale (mm)	α
Phan et Harvey (2010)		2,6	7,5	-	-	0,26
Phan et Harvey (2011)	Fil hélicoïdal	1,1	2,5	-	-	0,6
			5			
			7,5			
			10			
		15				
		0,6	7,5			0,7
Phan et al. (2011)	Ruban hélicoïdal	2,6	7,5	1,2	-	-
	Ruban hélicoïdal avec une tige centrale	2,6	7,5	0,5	1,2	-
Mazubert et al. (2016)	Ruban hélicoïdal	15	26	1	-	-
	Double ruban hélicoïdal					
	Ruban hélicoïdal alterné		26 Note : Alternance chaque deux périodes			
Ahmed et al. (2018b)	Fil hélicoïdal	3,65	7,5	1,1		0,59
Horie et al. (2018)	Fil hélicoïdal avec une tige centrale	0,85	6	-	0,95	0,34
McDonough al. (2019a)		1	7,5		1	0,73
Abdul Rahim et al. (2020)	Ruban hélicoïdal avec une tige centrale	1	7,5	-	1,2	-

1.6 Autres types de structures complexes

Des travaux ont été menés sur d'autres géométries de structures complexes. Les différentes structures restantes sont regroupées dans le tableau suivant.

Tableau I.7: D'autres géométries de structures complexes proposées dans la littérature

Référence	Structures	Caractéristiques et application	Photo
Singh et al. (2009a)	Arrangement de barres croisées	<ul style="list-style-type: none"> Structures formées de barres croisées faisant un angle de 45° avec l'axe du tube Un modèle de mélangeurs statiques 	
Singh et al. (2009b)	Arrangement de lames semi-elliptiques	<ul style="list-style-type: none"> Structures formées de deux lames épaisses semi-elliptiques inclinés vis-à-vis l'un de l'autre faisant un angle de 90° ou 120° Un modèle de mélangeurs statiques 	
Meng et al. (2017)	Arrangement de lames semi-elliptiques et triangulaires	<ul style="list-style-type: none"> Structures formées d'une succession de lames épaisses semi-elliptiques et triangulaires placés de façons hélicoïdale Un modèle de mélangeurs statiques 	
McDonough al. (2019b)	Arrangement de disques avec une tige centrale	<ul style="list-style-type: none"> Structures formées de plusieurs disques de diamètre 4 mm espacés périodiquement (espacement = 7,5 mm) sur une tige centrale de diamètre 1,5 mm Pour des COBR avec des applications monophasiques liquide 	
Abdul Rahim et al. (2020)	Arrangement de fils métalliques	<ul style="list-style-type: none"> Structures formées de tissus métalliques fabriqué en acier inoxydable avec des fils de diamètre 0,5mm Tissus introduit dans un réacteur oscillatoire continu 	

2. Application des structures en génie des procédés

Les différents domaines d'application du génie des procédés qui adoptent les structures à géométrie complexe sont divisés en trois grandes catégories :

- les applications de séparation qui utilisent les arrangements à base de plaques ondulées ou tissées (ex : Mellapak, Montzpak), les mousses métalliques et les structures périodiques pour les écoulements diphasiques gaz-liquide, et les arrangements cubiques, par exemple, pour les écoulements monophasiques,
- les applications de réaction ou/et de mélange qui se répartissent entre structures catalytiques (monolithes, mousses métalliques, POCS, etc.) et internes des réacteurs continus (ex : internes hélicoïdaux d'un réacteur oscillatoire continu).
- les applications d'échange de chaleur (ex : les POCS et les mousses).

Dans cette partie, nous nous sommes focalisés sur les deux premières applications qui concernent nos travaux de thèse, les applications de séparation – écoulement diphasique et les applications en réaction et/ou mélange. Les performances hydrodynamiques et de transfert de matière des structures complexes utilisés dans des colonnes d'absorption et/ou de distillation seront examinés en partie 2.1, alors que les performances des internes hélicoïdaux dans les COBR seront présentés en partie 2.2.

2.1 Les contacteurs gaz-liquide

Les contacteurs gaz-liquide sont des équipements chimiques dont le principe est basé sur le transfert de matière d'un constituant d'une phase vers une autre phase. Les contacteurs gaz-liquide, du type à contre-courants, sont fréquemment utilisés dans des opérations unitaires de séparation (ex : la distillation et l'absorption). Dans ce cas, ces contacteurs assurent le transfert de matière d'une phase gazeuse vers une phase liquide, ou l'inverse, dans une colonne verticale où les fluides circulent en continu et à contre-courant.

Suivant leur caractéristique, ces équipements se présentent sous différents types, comme par exemple les colonnes à garnissages, les colonnes à plateaux, ou les colonnes à pulvérisation (Figure I.12). Les différents contacteurs sont conçus de manière à fournir un maximum de surface d'échange, à garantir un meilleur coût, en impliquant des notions supplémentaires telles que la compatibilité avec les conditions hydrodynamiques du système adopté, la sécurité et la stabilité de fonctionnement, la cinétique, la thermodynamique, la rapidité d'exécution des étapes de démarrage et mise en régime.

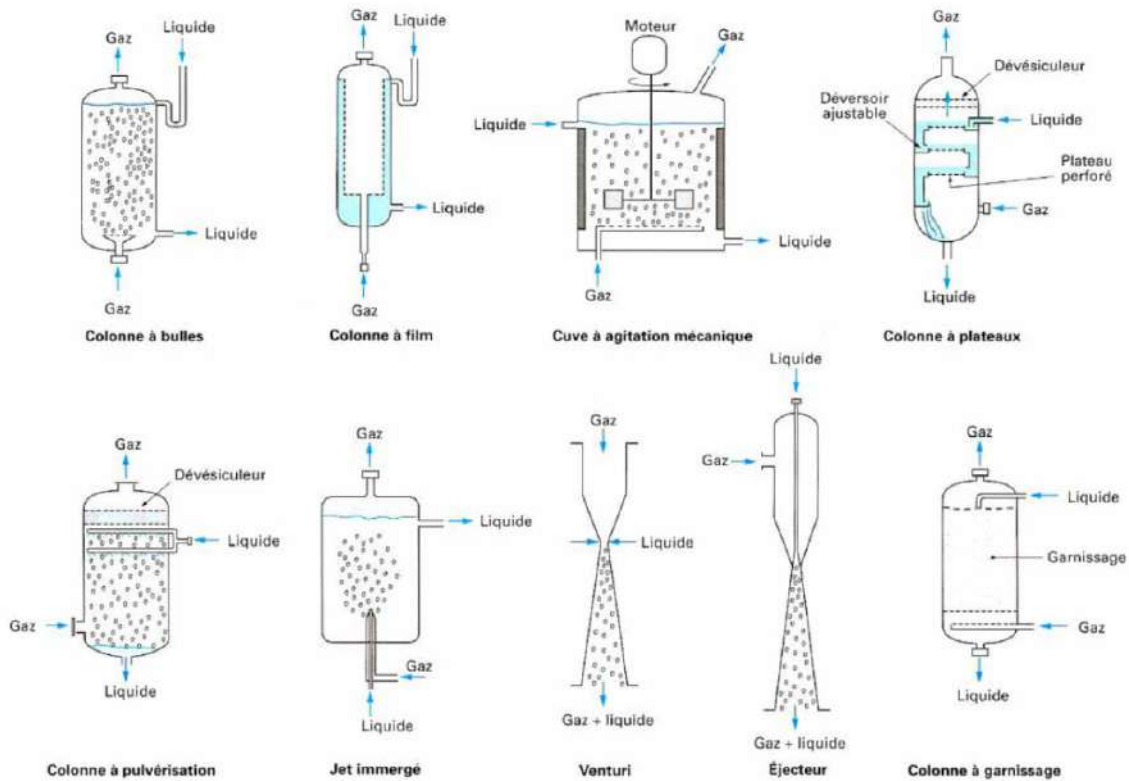


Figure I.12: Les différents types de contacteurs gaz-liquide (Roizard et al., 1997)

Le choix du contacteur gaz-liquide est imposé par des conditions de mise en œuvre spécifique à chaque opération unitaire de séparation. En terme de capacité, une colonne à plateaux présente la plus faible capacité (perte de charge élevée) puis les colonnes à garnissage et enfin les colonnes à pulvérisation. Par contre, en terme d'efficacité de séparation, les technologies de pulvérisation conduisent à un seul étage théorique par mètre tandis que les colonnes à plateaux ou à garnissage ne présentent pas cette limitation de transfert de matière. Par conséquent, afin de diminuer les pertes de charge des colonnes et avoir un meilleur contact entre les phases, les colonnes à garnissages ont remplacé les colonnes à plateaux dans plusieurs applications de séparation (Soulaïne, 2012).

Par définition, les colonnes de distillation ou d'absorption à garnissage sont des colonnes remplies de garnissages où un film liquide s'écoule par gravité avec un flux de gaz à contre-courant. Les colonnes à garnissages se divisent en deux catégories, les colonnes à garnissages vrac ou à garnissages structurés. Les garnissages structurés (Figure I.13.a), comme les arrangements à base de plaques ondulées ou tissées, présentent plusieurs avantages par rapport aux garnissages en vrac (Figure I.13.b). Les avantages listés en dessous sont définis comme étant les propriétés géométriques et les indicateurs de performance des garnissages :

1. Un taux de vide élevé (ϵ) / une faible perte de charge ($\Delta P/\Delta Z$)
2. Une surface spécifique élevée ($S_{géo}$) / une surface de contact importante
3. Un transfert de matière liquide-vapeur élevé (HEPT, Hauteur équivalente à un plateau théorique)
4. Une bonne résistance mécanique

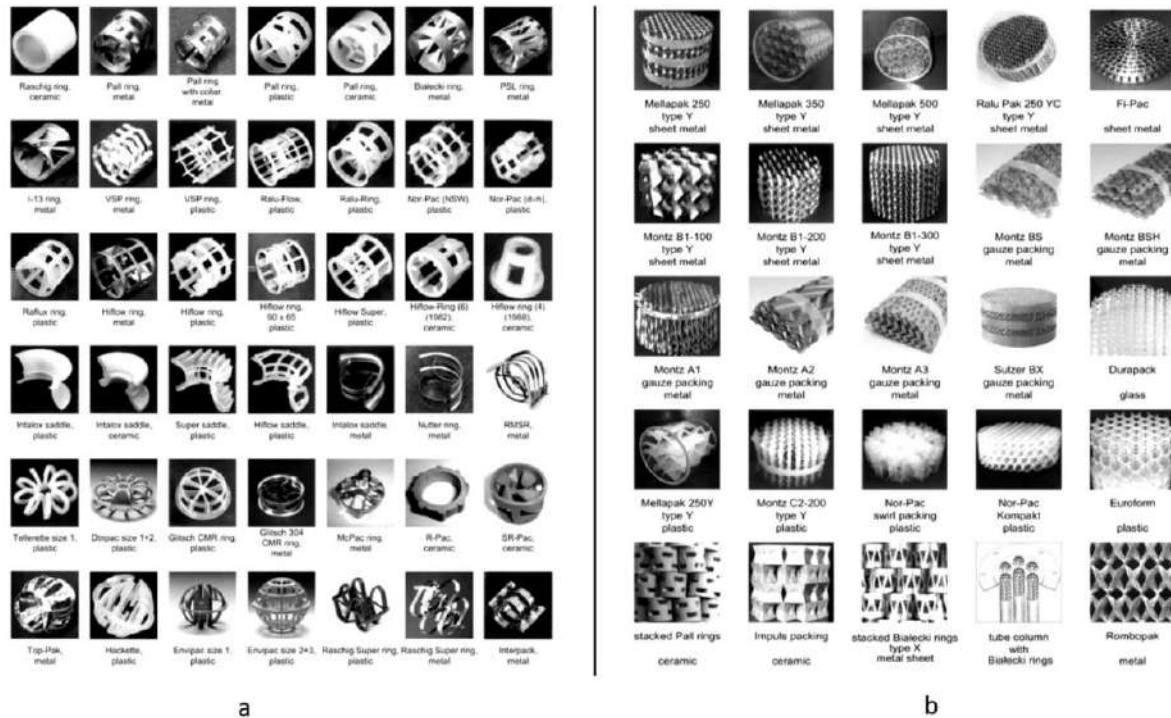


Figure 1.13: Exemples de garnissages (a) : vracs, (b) : structurés (Mackowiak, 2010)

D'un point de vue géométrique, les garnissages structurés apparaissent comme les structures complexes les plus intéressantes pour notre étude. Les performances hydrodynamiques et de transfert de matière de ces garnissages seront comparées en partie 2.1.1.

2.1.1 Performances des différents garnissages

Le point de départ des garnissages structurés est le brevet posé par Meier (1981) pour le compte de "Sulzer Brothers Ltd.". C'est à partir de ce brevet que les modèles BX et DX, à base de toiles tissées et connus aussi sous le nom de "*gauze packing*", sont créés. Depuis le dépôt de ce brevet, plusieurs modèles de garnissages structurés ont été développés (ex : les garnissages à base de tôles corruguées : Montzpak, Rombopak, etc.). Les principales voies suivies n'ont pas constitué une rupture sensible par rapport au brevet de référence (Meier, 1981).

Un interne performant doit présenter (1) une forte capacité et donc des faibles pertes de charge et (2) une efficacité de séparation élevée (faible HEPT). Le Tableau I.8 présente un résumé des performances de six garnissages structurés (Chemtech, 2010) (Fair et al., 2000) (Erasmus, 2004). Le KATAPAK est l'interne catalytique le plus étudié en génie des procédés (Moritz et Hasse, 1999) (Kolodziej et al., 2004). C'est un garnissage structuré catalytique ($\varepsilon = 0,5 - 0,6$ et $S_{géo} = 300 - 400 \text{ m}^2/\text{m}^3$) commercialisé par Sulzer Chemtech et formé de deux parties, la première partie consiste en des paniers remplis de particules de catalyseur et la seconde comporte des éléments de l'interne Mellapak.

Tableau I.8: Une sélection de garnissages à base de plaques avec les différentes performances hydrodynamiques et de transfert de matière

Modèle de garnissage	Perte de charge	Transfert de matière
BX gauze packing	0 à 9 mbar/m pour Facteur F de 0 à 2,8 Pa ^{0,5} (colonne de diamètre 250 mm)	HEPT = 0,28 m
Mellapak 250Y	0 à 9 mbar/m pour Facteur F de 0 à 2,5 Pa ^{0,5}	HEPT = 0,38 m
Montzpak B1-250	0 à 12 mbar/m pour Facteur F de 0 à 2,5 Pa ^{0,5}	HEPT = 0,33 m
Rombopak S4M	-	HEPT = 0,55 m
Flexipac 350Y	0 à 9,5 mbar/m pour Facteur F de 0 à 2,5 Pa ^{0,5}	HEPT = 0,27 m
KATAPAK (pour la distillation réactive)	0 à 12 mbar/m pour Facteur F de 0 à 2,2 Pa ^{0,5}	HEPT = 0,35 m

Le Rombopak présente une faible efficacité de séparation (HEPT élevée) par rapport aux autres modèles. Sa faible surface spécifique ($S_{géo} = 165 \text{ m}^2/\text{m}^3$) entraîne une diminution de la surface de contact, ce qui influence négativement les performances de transfert de matière. D'un autre côté, le modèle BX ($S_{géo} = 500 \text{ m}^2/\text{m}^3$) présente une efficacité de séparation améliorée par rapport au Rombopak ($S_{géo} = 165 \text{ m}^2/\text{m}^3$) et au Mellapak 250Y et Montzpak B1-250 ($S_{géo} = 250 \text{ m}^2/\text{m}^3$) grâce à sa surface spécifique importante. Les toiles tissées métalliques du modèle BX développent d'importantes surfaces de contact et ainsi augmentent l'efficacité de transfert de manière significative. Cependant, ces garnissages structurés sont peu utilisés à l'échelle industrielle. Ils nécessitent l'utilisation des fluides propres et se limitent à des lits de faible épaisseur car ils sont incapables de conserver une bonne distribution liquide sur une grande hauteur. D'un autre côté, les garnissages formés de tôles corruguées (les internes de Sulzer Chemtech, de Montz Company, et de Koch-Glitsch, respectivement, le Mellapak 250Y, le Montzpak B1-250, et le Flexipac 350Y) montrent de bonnes performances en termes de transfert de matière et de perte de charge. Parmi une grande diversité de garnissages à base de plaques, ce type d'internes est le plus utilisé dans l'industrie. De plus, les toiles tissées sont adaptées aux faibles taux d'arrosages alors que les tôles corruguées ont besoin de taux d'arrosage plus conséquents pour bien fonctionner.

Les améliorations géométriques des garnissages à base de plaques font l'objet de nombreux travaux et brevets. Les pistes d'amélioration ont pour but d'augmenter la capacité et l'efficacité de séparation des internes. Une des pistes étudiées est l'augmentation de l'angle d'inclinaison entre deux plaques adjacentes d'un seul interne. Cet angle est normalement calculé par rapport à l'axe vertical et il est égal à 45° pour les garnissages standards (Mellapak 250Y, Montzpak B1-250). La Figure I.14 montre que l'augmentation de l'angle d'inclinaison de 45° (ex : Mellapak 250Y et Montzpak B1-250) à 60° (ex : Mellapak 250X et Montzpak B1-250.60) entraîne une diminution de la perte de charge et une augmentation de la HEPT (diminution de l'efficacité de séparation). Le garnissage présentera plus des zones de mélange quand l'angle d'inclinaison diminue, ce qui augmente le transfert en phase liquide et permet d'améliorer le transfert de matière global.

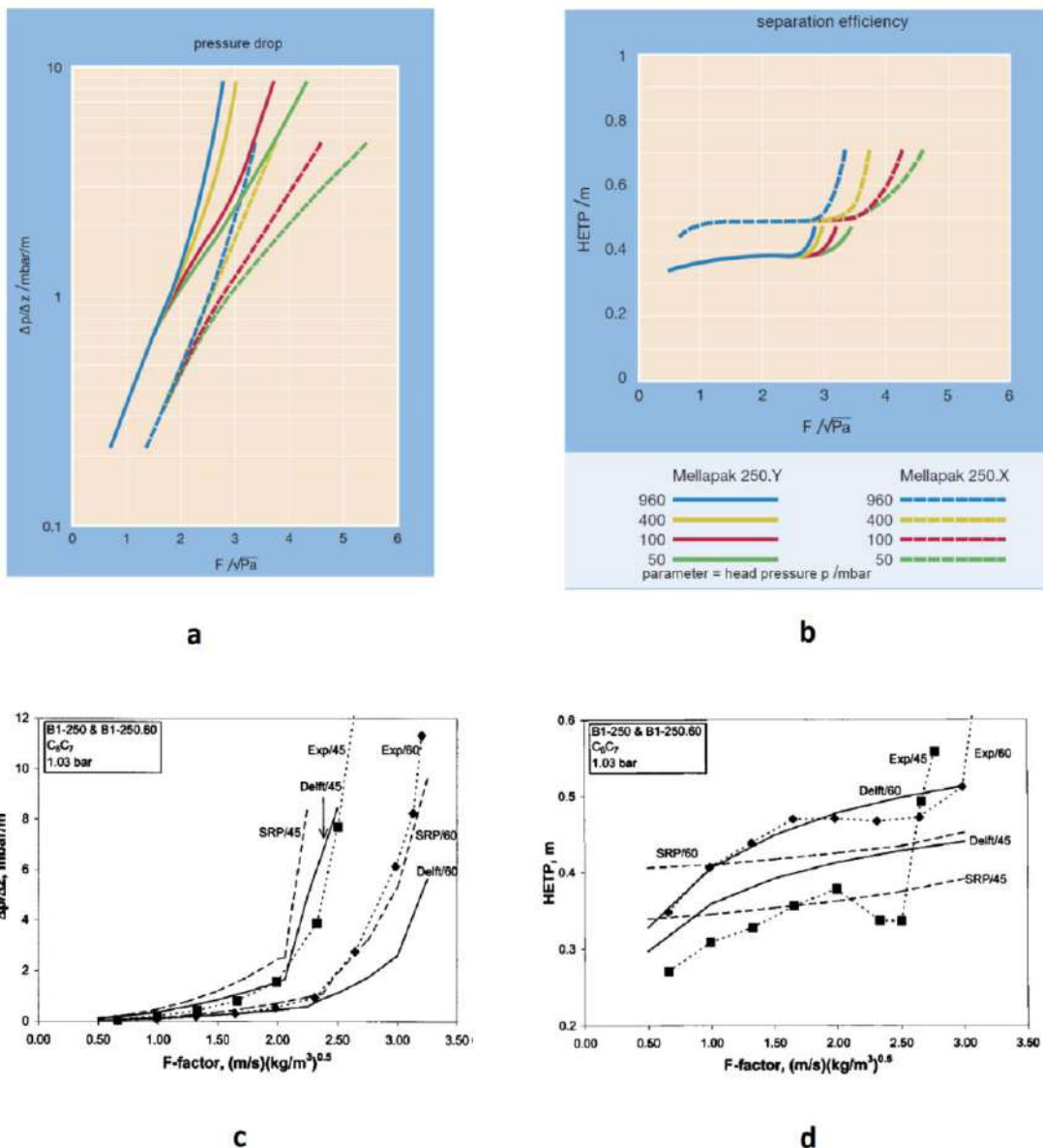


Figure I.14: Une comparaison de la perte de charge et de la HEPT entre (a) et (b) : le Mellapak 250Y (45°) et 250X (60°) (Chemtech, 2010), (c) et (d) : le Montzpak B1-250 (45°) et B1-250.60 (60°) (Fair et al., 2000)

Une autre piste évoquée est la modification de l'état de surface des tôles corruguées des structures. Normalement, dans une colonne à garnissages, chaque deux garnissages structurés voisins sont tournés l'un par rapport à l'autre dans l'axe de la colonne d'un angle de 90° (Soulaïne, 2012). Cela signifie que l'écoulement de gaz change brusquement de direction à chaque transition entre deux garnissages (Wang et al., 2014). Il en résulte une augmentation de la perte de charge dans la zone où deux internes se touchent, et donc un engorgement de cette zone (Brunazzin et Paglianti, 1997) (Olujic, 2019). Dans une autre étude, des mesures ont montré des accumulations de liquide entre deux garnissages voisins (Suess and Spiegel, 1992). C'est ce qui génère un engorgement local qui se propage ensuite à tout le lit. Pour ces raisons, la société Sulzer Chemtech a commercialisé le garnissage MellapakPlus (Figure I.15), alors que Montz Company, et Koch-Glitsch ont commercialisé les garnissages Montzpak Type M et Flexipac HC (*high capacity*). Le passage à ces garnissages permet de faire disparaître cette accumulation locale. L'écoulement de gaz sera presque parallèle à l'axe vertical de la colonne, réduisant ainsi la vitesse du gaz d'environ 25% (Brunazzin et Paglianti, 1997).

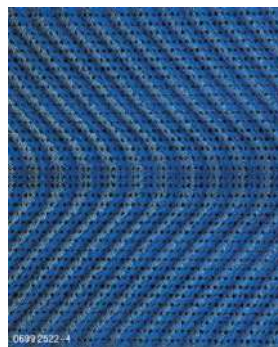


Figure I.15: Le principe de la structure MellapakPlus (Chemtech, 2010)

Brunazzin et Paglianti (1997) ont comparé les performances hydrodynamiques du MellapakPlus aux performances du Mellapak 250Y sous différents débits liquides (Figure I.16.a). Pour un débit de liquide constant, l'interne 250Y présente toujours une perte de charge supérieure (faible capacité) à celle du MellapakPlus (avec une même efficacité de séparation). Le même comportement est observé avec les garnissages Montzpak B1-250 standard et B1-250 type M (Figure I.16.b) ainsi que pour les garnissages Flexipac standard et HC. Les internes Flexipac HC présente une forte capacité (+40%) par rapport à l'interne standard (Koch-Glitsch, 2015).

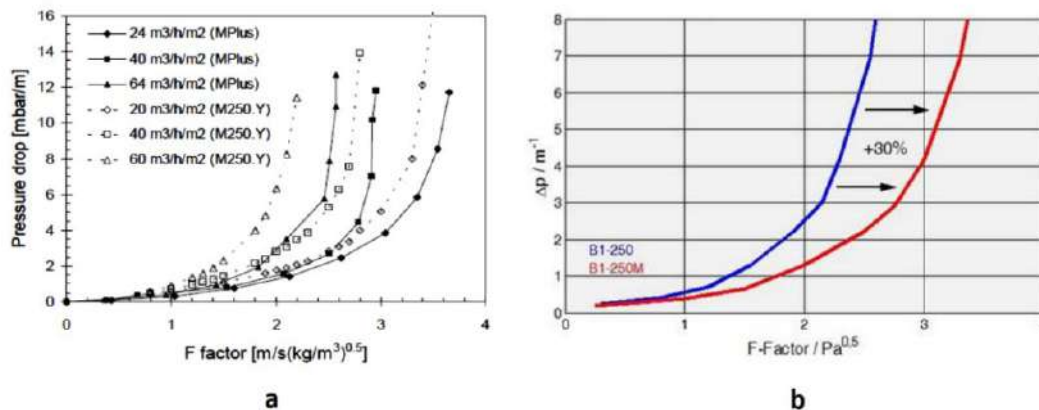


Figure I.16: Une comparaison entre les pertes de charge du (a) : Mellapak 250Y et MellapakPlus (Brunazzin et Paglianti, 1997), (b) : Montzpak B1-250 et Montzpak B1-250 Type M (Montz, 2010)

Une autre piste d'amélioration évoquée est l'ajout des perforations sur les tôles corruguées pour avoir une bonne distribution du liquide sur la surface des internes (Figure I.17.b). En effet, les garnissages à base de plaques présentent un inconvénient important, le liquide n'est pas capable de se répartir sur toute la surface du garnissage, ce qui conduit à une diminuer le transfert de matière (Figure I.17.a). Li et al. (2012) ont démontré que sous les mêmes conditions opératoires et pour une même surface spécifique, l'efficacité de transfert de matière de la nouvelle structure augmente de 20% environ par rapport à l'efficacité de séparation du garnissage classique. Toutefois, le dernier présente toujours une meilleure capacité (20-30%) par rapport à la nouvelle configuration.

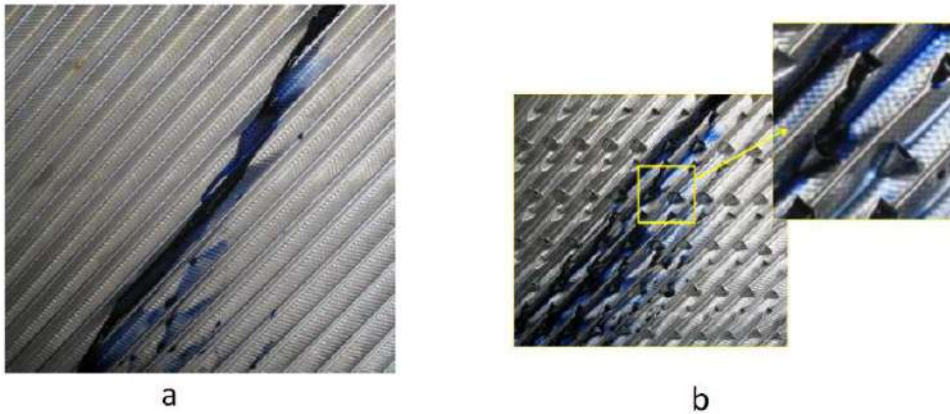


Figure I.17: Une comparaison de la distribution du liquide entre (a) : un garnissage à base de plaques classique et (b) : la nouvelle structure de Li et al. (2012)

Dans une étude plus récente, Sun et al. (2021) ont aussi démontré que la présence des perforations sur les tôles des garnissages structurés (Mellapak 250Y et Montzpak B1-500) entraîne une augmentation des performances de transfert de matière. Les perforations fournissent des canaux supplémentaires dans lesquels les fluides pénètrent et se mélangent, ce qui améliore la mouillabilité des plaques et augmentent l'air interfaciale. D'un autre côté, malgré que les perforations entraînent une augmentation du taux de vide des internes, les auteurs ont démontré que les pertes de charges augmentent de 10%.

Bien que les modifications géométriques des internes structurés à base de plaques aboutissent à une amélioration des performances hydrodynamiques et de transfert de matière, d'autres études ont été réalisées sur d'autres types de garnissages afin d'exploiter leur potentiel en tant que contacteurs gaz-liquide. Comme vu dans la partie 1.2, les mousses métalliques présentent des caractéristiques géométriques intéressantes (ϵ et $S_{géo}$ élevés). Lévêque (2009) a utilisé les mousses céramiques β -SiC en tant que contacteurs gaz liquide dans des colonnes de distillation. La Figure I.18 montre que les mousses céramiques présentent une faible capacité et une efficacité en transfert de matière supérieure à celle du Mellapak. Ces tendances sont en accord avec l'ordre du taux de vide et de la surface spécifique de ces deux garnissages (Tableau I.1 et I.3).

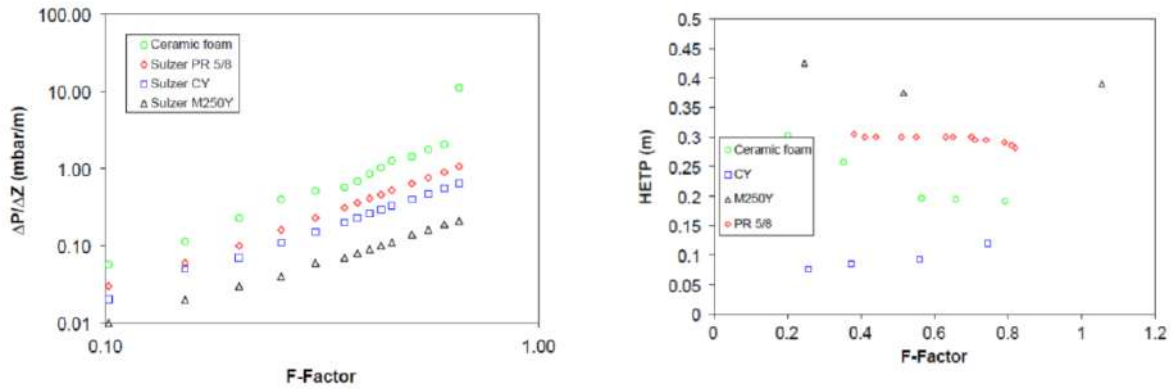


Figure I.18: Une comparaison des performances des mousses céramiques et des garnissages Sulzer Chemtech (Lévêque, 2010)

Toujours dans l'objectif de trouver un garnissage performant, Bolton et al. (2019) ont effectué des mesures de la perte de charge sur des structures complexes ayant des cellules de diamètres différents ; ce sont les POCS présentées précédemment en Tableau I.4. Les données expérimentales sont comparées aux pertes de charge du Mellapak 250Y et aux valeurs des pertes de charge calculées par les corrélations de Mackowiak (2010) (voir partie 2.1.2). L'étude montre que les pertes de charge à sec obtenues expérimentalement sont en bonne concordance avec les valeurs théoriques, alors que les pertes de charge pour un système diphasique sont surestimées par la corrélation. La Figure I.19 montre les résultats de comparaison. Le Mellapak présente toujours une perte de charge inférieure à celle des POCS étudiées. Néanmoins, la structure formée de cellules de diamètre 12,7 mm montre des performances satisfaisantes et proches du Mellapak.

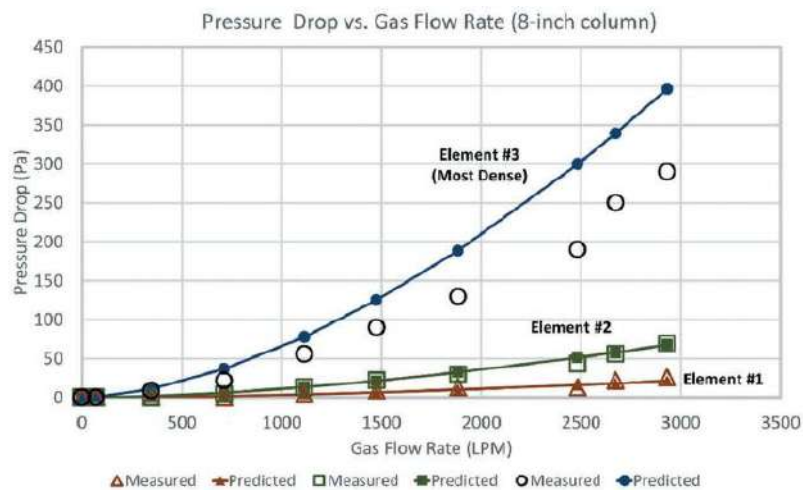


Figure I.19: Une comparaison des pertes de charge entre 3 structures différentes (Bolton et al., 2019)
Element #1 = Mellapak, Element #2 et #3 = POCS avec des cellules de diamètre 12,7 et 6,35 mm

2.1.2 Modélisation des performances

L'évaluation des performances des internes est un facteur fondamental pour le dimensionnement des contacteurs. Depuis 1920, plusieurs modèles d'évaluation des performances des garnissages sont disponibles dans la littérature. Chaque modèle prend en considération plusieurs facteurs tels que le type de garnissage, ses paramètres géométriques, les propriétés physico-chimiques du système adopté, et les conditions opératoires.

Les corrélations développées peuvent être classées en deux groupes (Kawas et al., 2021b) :

1. Les modèles qui prédisent les performances hydrodynamiques (perte de charge, rétention de liquide, vitesse d'engorgement) : Ergun (1952), Stichlmair et al. (1989), Miyahara et al. (1992), Lévêque et al. (2009), Mackowiak (2010), Inayat et al. (2016).
2. Les modèles qui évaluent l'efficacité de séparation (HEPT, coefficient de transfert de masse) : Lockett et al. (1998), Carillo et al. (2000), Kolodziej et al. (2004), Wang et al. (2005), Haroun et al. (2012).

Certains modèles prédictifs de perte de charge en écoulement monophasique et diphasique, de la vitesse à l'engorgement, et de l'efficacité de séparation (HEPT) sont illustrés en Figure I.20 et I.21.

Reference	Dry pressure drop	Wet pressure drop	Specifications
Inayat et al. (2016)	$\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{dry} = \frac{32\tau^2 \mu_g u_g}{\varepsilon d_p^2} + \frac{\tau^3 \rho_g u_g^2}{2 \varepsilon^2 d_{hg}}$ $d_{hg} = \frac{4\varepsilon}{a_g}$ $a_g = \phi \frac{[1-0.971(1-\varepsilon)^{0.5}]}{\delta_{window} (1-\varepsilon)^{0.5}} (1-\varepsilon)$ $\tau = 1 + \phi \frac{[1-0.971(1-\varepsilon)^{0.5}]}{4\varepsilon(1-\varepsilon)^{0.5}} (1-\varepsilon)$	-	<ul style="list-style-type: none"> - For high porosity open-cell foams - Require the value of δ_{window}
Mackowiak (2010)	$\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{dry} = \psi \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon^3} \frac{F^2}{d_p K}$ $K = 1 + \frac{2}{3} \frac{1}{1-\varepsilon} \frac{d_p}{D_c}$ $d_p = \frac{6(1-\varepsilon)}{a_g}$ $Re_g = \frac{\rho_g u_g d_p}{(1-\varepsilon)\mu_g} K$	$\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{wet} = \psi \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon^3} \frac{F^2}{d_p K} \left[1 - C_B \frac{a_g^{1/3}}{\varepsilon} u_1^{2/3}\right]^{-5} \quad (\text{for } Re_1 \geq 2)$ $C_B = \left[1 - \frac{\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{dry} \left(\frac{\Delta Z}{\Delta P}\right)_{wet, experimental}}{u_1^{2/3}}\right] \frac{\varepsilon}{a_g^{1/3}}$ $Re_1 = \frac{u_1 \rho_1}{a_g \mu_1}$	<ul style="list-style-type: none"> - For random and structured packings (i.e. Pall rings, Mc-Pac size 2, Montz B1-100 type Y, etc.) - Require the value of ψ
Lévêque et al. (2009)	$\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{dry} = 150 \frac{\mu_g (1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 d_p^2} u_g + 1.85 \frac{\rho_g (1-\varepsilon)}{\varepsilon^3 d_p} u_g^2$ $d_p = \frac{6d_s}{4}$	$\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{wet,1} = 1.1 Re_1^{0.2} \left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{dry}$	<ul style="list-style-type: none"> - For foam structures (i.e. β-SiC foams)

Figure I.20: Certaines corrélations d'évaluation de perte de charge (en Pa/m) (Kawas et al., 2021b)

Chapitre I : Etat de l'art : Structures d'internes complexes pour des technologies de génie des procédés

Reference	Flooding velocity	HETP	Specifications
Miyahara et al. (1992)	$X^{0.5} + Y^{0.5} = 0,629$ $X = u_{gFL} \left(\frac{\rho_g \mu_1^{0.2} a_g}{\rho_l^{1.3} g} \right)^{0.5}$ $Y = u_l \left(\frac{\mu_1^{0.2} a_g}{\rho_l^{1.3} g} \right)^{0.5}$	-	<ul style="list-style-type: none"> • For random packings having high void fractions (i.e. Dixon Packing (M)) and low height packed columns (between 0.1 and 0.6 m) - For random and structured packings (i.e., Pall rings, gauze packing, etc.) - Require the value of ψ_{FL} and the calculation of h_{TFL}
Mackowiak (1990)	$u_{gFL} = 0.565 \psi_{FL}^{-\frac{1}{6}} \epsilon^{1.2} \left(\frac{d_{hg}}{d_T} \right)^{0.25} \left(\frac{d_T g (\rho_l - \rho_g)}{\rho_g} \right)^{0.5} (1 - h_{TFL})^{7/2}$ $h_{TFL} = \frac{\sqrt{1.44\lambda_0^2 + 0.8\lambda_0(1-\lambda_0)} - 1.2\lambda_0}{0.4(1-\lambda_0)} \quad (\text{for } Re_l \geq 2)$ $h_{TFL} = \frac{\sqrt{1.25\lambda_0^2 + 0.48\lambda_0(1-\lambda_0)} - 1.12\lambda_0}{0.24(1-\lambda_0)} \quad (\text{for } Re_l < 2)$ $d_T = \sqrt{\frac{\eta}{(1-\rho_g)g}} \quad \text{and } \lambda_0 = \frac{\eta}{u_{gFL}}$	-	
Lockett (1998)		$HETP = \frac{1.54g^{0.5}(\rho_l - \rho_g)^{0.5} \left(\frac{\mu_1}{\mu_{water}} \right)^{-0.06}}{a_g \left(1 + 0.78 \exp(0.0058 a_g) \left(\frac{\rho_g}{\rho_l} \right)^{0.25} \right)^2}$	- For structured and sheet packings

Figure I.21: Certaines corrélations d'évaluation de la vitesse à l'engorgement (en m/s) et l'efficacité de séparation (HEPT en m) (Kawas et al., 2021b)

Inayat et al. (2016) ont développé une corrélation pour déterminer la perte de charge en écoulement monophasique (Figure I.20) pour des mousses métalliques et céramiques à cellules ouvertes (ayant des taux de vide élevés). La corrélation est basée sur la formule d'Ergun (1952). Ces auteurs ont aussi développé une corrélation pour calculer la surface spécifique des mousses. Une constante ϕ apparaît dans cette équation pour décrire la forme des cellules (Figure I.22). L'expression du diamètre hydraulique du gaz utilisé dans ce modèle a été précédemment démontrée par Dietrich et al. (2009).

Mackowiak (2010) a déterminé les pertes de charge de plusieurs garnissages vrac et structurés, tels que les Montzpak et les Mellapak. Deux corrélations pour prédire les performances hydrodynamiques ont été développées (Figure I.20). Mackowiak (2010) a introduit le coefficient K pour représenter l'effet de la paroi et le coefficient de résistance (ψ) pour un écoulement monophasique. ψ est généralement déterminé en fonction du nombre de Reynolds du gaz (Figure I.23) ; il est dépendant du type du garnissage (par exemple, entre 0,4 et 1 pour les internes de la société Sulzer Chemtech).

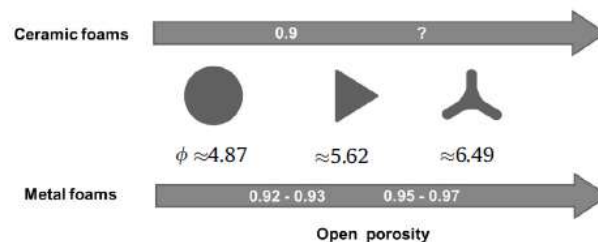


Figure I.22: Les valeurs de ϕ en fonction de la forme des cellules des mousses (Inayat et al., 2016)

Le même auteur a aussi déterminé une corrélation pour l'évaluation de la vitesse à l'engorgement des garnissages vrac et structurés pour des systèmes gaz-liquide (Mackowiak, 1990). Comme montre la Figure I.21, l'évaluation de cette vitesse nécessite le calcul de la rétention liquide à l'engorgement. La dernière dépend du nombre de Reynolds du liquide.

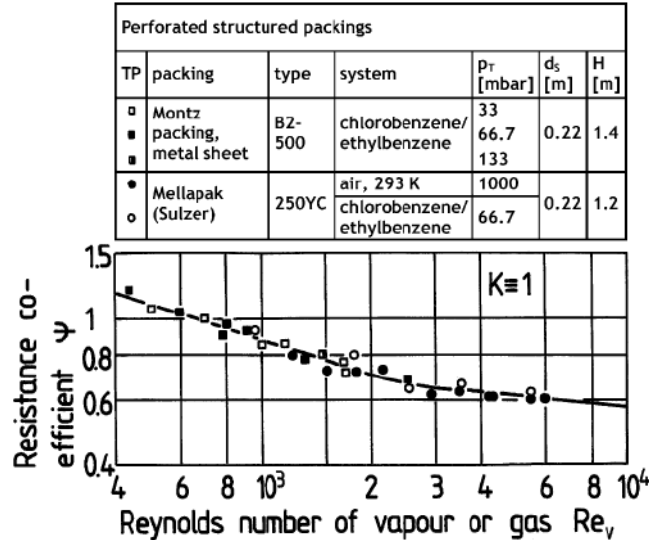


Figure I.23: Le coefficient de résistance en fonction du nombre de Reynolds du gaz pour Montzpak et Mellapak (Mackowiak, 2010)

D'autres corrélations empiriques sont développées pour évaluer numériquement la vitesse d'engorgement des colonnes à garnissages. Par exemple, Miyahara et al. (1992) ont proposé un modèle pour calculer les vitesses d'engorgement des colonnes à garnissages vrac et structurés (Figure I.21). Ce modèle est appliqué sur plusieurs garnissages en adoptant trois systèmes opératoires différents (eau, eau/éthanol et eau/glycérol) dans une colonne garnie de faible hauteur (Kawas et al., 2021b).

Toutefois, pour la détermination de la vitesse à l'engorgement, la corrélation graphique de Lobo et al. (1945) reste la corrélation la plus connue. Le modèle est basé sur les travaux de Sherwood et al. (1938) qui ont étudié l'influence de la viscosité du liquide et de la densité du gaz sur les vitesses d'engorgement d'une colonne remplie de garnissages vrac (anneaux de Raschig). Ce modèle graphique est la norme pour prédire les points d'engorgement dans une colonne à garnissage vrac pour un écoulement gaz-liquide (Figure I.24).

Les performances de séparation d'une colonne à garnissage sont exprimées à travers la HEPT (voir Chapitre II). Lockett et al. (1998) ont développé une corrélation pour calculer la HEPT des garnissages structurés (Figure I.21). Il existe d'autres modèles d'évaluation de l'efficacité de transfert de matière. Toutes ces modèles sont élaborés dans deux articles de synthèse de Wang et al. (2005) et Hegely et al. (2017).

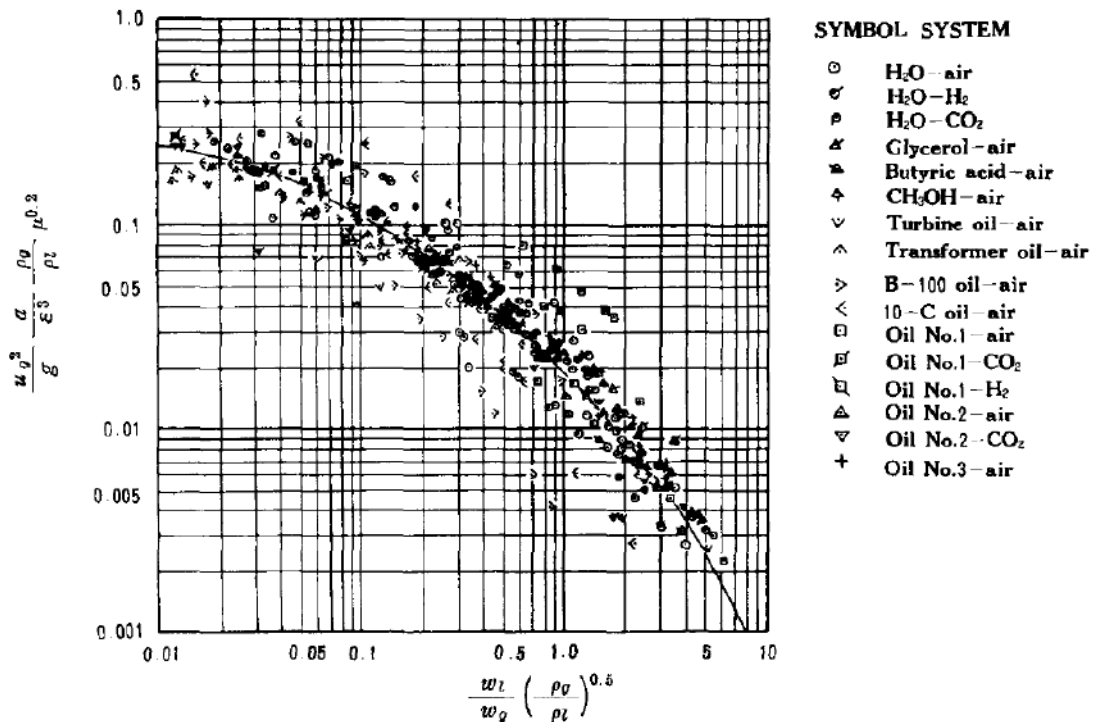


Figure 1.24: La corrélation graphique de Lobo (Takahashi et Fujita, 1967)

Tous les modèles présentés précédemment nécessitent l'acquisition de nombreux points expérimentaux ; un autre moyen est la simulation de la mécanique du fluide (CFD : *Computational Fluid Dynamics*). Plusieurs travaux suivent cette tendance actuelle notamment pour :

- déterminer la perte de charge des garnissages et étudier l'effet de la géométrie sur les performances hydrodynamiques (Said et al., 2011) (Hosseini et al., 2012) (Olenberg et al., 2018) (Neukaeufer et al., 2019) (Sun et al., 2021),
- calculer la rétention liquide (Chen et al., 2009) (Haroun et al., 2012),
- évaluer les performances de transfert de matière (Chen et al., 2009) (Haroun et al., 2012).

La plupart des modèles d'évaluation des performances hydrodynamiques et de transfert de matière des garnissages sont basées sur des études expérimentales effectuées sur des types spécifiques d'internes. Lorsqu'ils sont appliqués sur des configurations nouvellement conçues, plusieurs limitations par rapport à la géométrie (ex : taux de vide, surface spécifique), au système adopté (propriétés physico-chimiques, conditions opératoires), et aux paramètres spécifiques requis pour les calculs (ϕ , ψ , K , etc.) apparaîtront. Des nouvelles corrélations seront alors nécessaires pour prédire les performances des internes ayant des géométries différentes de celles des garnissages existants.

2.2 Les internes des réacteurs oscillatoires continus

Les réacteurs à écoulement piston, connus sous le nom PFR (*plug flow reactor*), sont des réacteurs tubulaires très largement utilisés dans l'industrie. Ces réacteurs consistent en un tube simple assurant un écoulement proche du piston. Il est aussi possible d'obtenir ce type d'écoulement avec des réacteurs agités montés en série (CSTR). Cependant, un nombre infini de CSTR est nécessaire pour avoir un écoulement idéal. Cette configuration nécessite alors de grandes opérations de fonctionnement, un large espace de stockage, une énergie et un coût élevés. La meilleure alternative consiste alors à utiliser les réacteurs tubulaires.

Des sociétés telles que NiTech Solutions Ltd ont développé un réacteur tubulaire oscillatoire continu (Figure I.25) appelé COBR de diamètre 15 mm. Il existe plusieurs types de réacteurs COBR, définis par des paramètres spécifiques liés à leur géométrie d'internes et leur conception (Figure I.26). Le réacteur à couronnes (*single baffle orifice*) est le réacteur le plus répandu dans l'industrie. Il consiste en un tube équipé de chicanes (appelées aussi plaques ou couronnes) perpendiculaires à la paroi et équidistantes sur toute la longueur.



Figure I.25: Le réacteur oscillatoire continu développé par NiTech Solutions Ltd (Nitech Solutions, 2019)

Le mouvement oscillatoire dans les COBR est généré à l'aide d'un piston ou d'un autre dispositif installé à une ou aux deux extrémités du tube. Les pulsations sont caractérisées par une fréquence (f en Hz) et une amplitude (x_0 en m) ; elles permettent la génération des tourbillons derrière les chicanes ce qui favorisent le mélange et le contact entre les phases. Le rôle des chicanes est alors d'augmenter les instabilités hydrodynamiques, d'améliorer le mélange, et d'augmenter le temps de séjour du fluide dans le réacteur (McDonough et al., 2015).

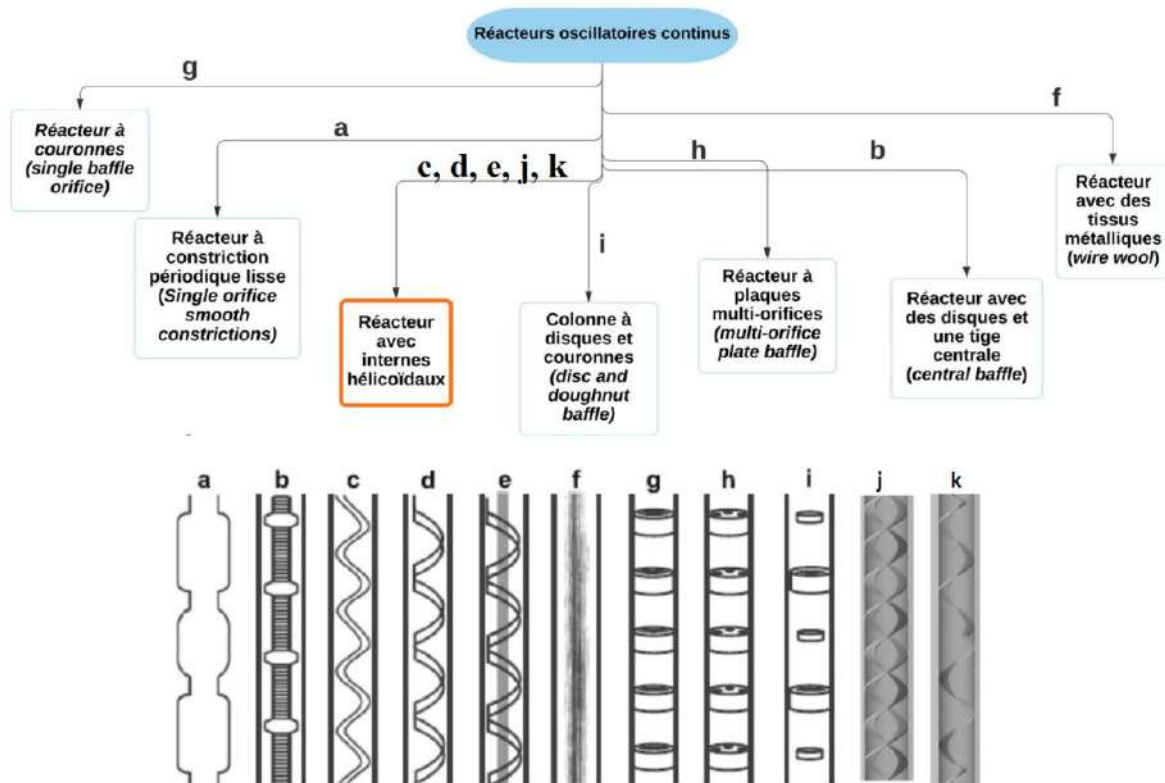


Figure I.26: Les différents types des réacteurs oscillatoires continus

Plusieurs études montrent que la géométrie hélicoïdale assure un écoulement piston et un mélange radial le long du tube pour de nombreuses conditions oscillatoires (ex : Phan et Harvey, 2010, Phan et Harvey, 2011). L'écoulement piston est atteint plus rapidement avec la géométrie hélicoïdale qu'avec les autres géométries. La génération de tourbillons supplémentaires (*swirling flow*, Figure I.27) prend lieu grâce aux interactions du mouvement oscillatoire avec les internes hélicoïdaux (Ahmed et al., 2018a, McDonough et al., 2019b).

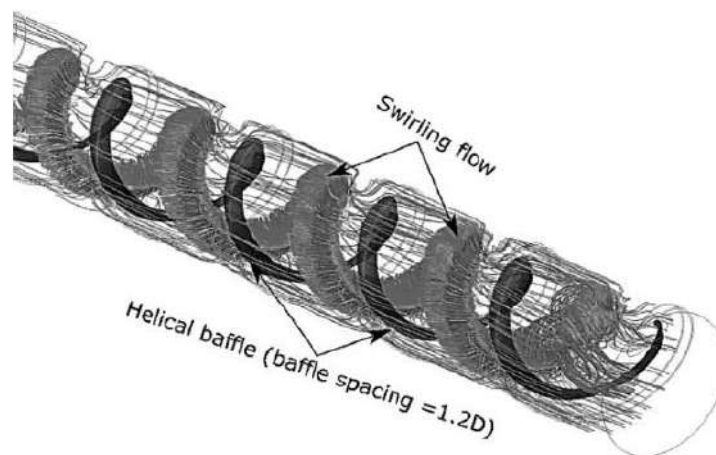


Figure I.27: La génération des tourbillons dans un COBR avec un interne hélicoïdal (Ahmed et al., 2017)

2.2.1 Caractérisation hydrodynamique des COBR

Cette partie présente les nombres adimensionnels qui caractérisent les COBR ainsi qu'une synthèse bibliographique sur les performances de ces réacteurs avec des internes hélicoïdaux (Figure 1.26, en orange), l'objet de notre étude. Les géométries des différents internes utilisés ont été présentées en partie 1.5.

Le flux oscillatoire généré dans le réacteur oscillatoire continu provoque des instabilités dans les écoulements laminaires. Le principal critère qui sépare l'écoulement laminaire de l'écoulement turbulent est le nombre de Reynolds net. Ce Re_{net} est un nombre adimensionnel fondamental en mécanique des fluides qui exprime le rapport des forces d'inertie aux forces de viscosité. Pour un COBR, le nombre de Reynolds net est défini par :

$$Re_{net} = \frac{\rho_f U_{net} D_{COBR}}{\mu_f} \quad (1.2)$$

μ_f et ρ_f sont la viscosité dynamique et la masse volumique du fluide (en Pa.s et en kg/m^3), respectivement. U_{net} représente la vitesse du fluide (en m/s) et D_{COBR} est le diamètre du réacteur oscillatoire continu (exprimé en m).

Le nombre de Reynolds oscillatoire (Re_o) décrit l'intensité du mélange dans le réacteur.

$$Re_o = \frac{2\pi f x_o \rho_f D_{COBR}}{\mu_f} \quad (1.3)$$

avec f (en Hz) et x_o (en m) la fréquence et l'amplitude des pulsations, respectivement.

Le rapport du nombre de Reynolds oscillatoire par le nombre de Reynolds net est le paramètre ψ_v , aussi appelé rapport de vitesses :

$$\psi_v = \frac{Re_o}{Re_{net}} \quad (1.4)$$

Une gamme de ψ_v entre 2 et 4 est recommandée pour assurer un bon écoulement piston (Stonestreet et Van Der Veecken, 1999).

Afin de décrire le flux oscillatoire ainsi que la génération des tourbillons dans les réacteurs, le nombre de Strouhal (St) est calculé à partir de x_o :

$$St = \frac{D_{COBR}}{4\pi x_o} \quad (1.5)$$

Finalement, le nombre de Péclet (Pe) est calculé pour juger le caractère piston de l'écoulement. Il représente le rapport du transport convectif sur le transport diffusif. Pe est inversement proportionnel au coefficient de dispersion axiale (D_{ax} en m^2/s). Les réacteurs avec un grand nombre de Pe et un faible coefficient D_{ax} se rapprochent du modèle piston idéal.

$$Pe = \frac{\bar{U}_{net} L_{COBR}}{D_{ax}} \quad (1.6)$$

avec L_{COBR} la longueur du COBR (en m), \bar{U}_{net} la vitesse moyenne du fluide (en m/s).

Ces nombres adimensionnels (Eq. I.2, I.3, I.4, I.5, et I.6) sont généralement utilisés pour décrire les performances des différents types des réacteurs oscillatoires continus.

2.2.2 Performances des réacteurs avec les internes hélicoïdaux

Comme vu dans la partie 1.5, il existe différentes géométries des internes hélicoïdaux. Phan et Harvey (2011) ont étudié l'influence de certains paramètres géométriques ($d_{\text{hélice}}$ et pas) sur le mélange du fluide dans des réacteurs avec des fils hélicoïdaux. Six réacteurs COBR différents sont fabriqués à l'échelle millimétriques avec des internes en acier inoxydable (Tableau I.6 et Figure I.28). Ces réacteurs sont caractérisés par un pas variant entre $0,5D_{\text{COBR}}$ et $3D_{\text{COBR}}$ (avec D_{COBR} = le diamètre du tube = 5mm) et un diamètre, $d_{\text{hélice}}$ égal à 0,6 ou 1,1 mm.

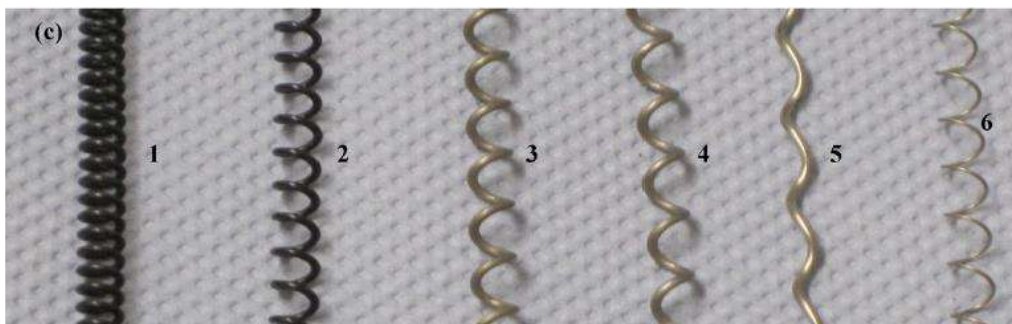


Figure I.28: Les internes hélicoïdaux fabriqués en acier inoxydable (Phan et Harvey, 2011)

L'effet du pas est examiné en opérant à un faible débit net, donc un faible Reynolds net ($Re_{\text{net}} = 7,2$), tandis que l'effet du diamètre est analysé sur une large gamme d'amplitudes et de fréquences, entre 1 et 4 mm et 0,5 et 10 Hz, respectivement. Les auteurs ont constaté que l'influence du diamètre du fil sur le mélange est quasiment négligeable avec des faibles amplitudes ($x_o < 2\text{mm}$ et $St > 0,2$). Cependant, l'augmentation du diamètre du fil améliore le degré de mélange dans les COBR sous les conditions opératoires suivantes : une amplitude supérieure à 2 mm ($St \leq 0,2$) et un Reynolds oscillatoire supérieur à 300. D'un autre côté, un écoulement piston est détecté dans les COBR ayant un grand pas sous une amplitude d'oscillation élevée. Une relation entre le pas et l'amplitude est ainsi proposée dans cette étude ; l'écoulement piston est toujours atteint pour un rapport amplitude/pas compris entre 0,2 et 0,6.

Phan et al. (2011) ont présenté un nouveau type d'interne hélicoïdal pour la production du biodiesel. Cet interne est un ruban hélicoïdal fabriqué en acier inoxydable et introduit dans un tube de longueur 340 mm et de diamètre interne 5 mm (Tableau I.6). Le réacteur adopté dans l'étude a été illustré précédemment en Figure I.11.b. En comparant le nouveau design au fil hélicoïdal, Phan et al. (2011) déduisent que le ruban hélicoïdal conduit à un meilleur rendement. Un mélange homogène et plus efficace est observé, ce qui améliore le transfert massique. L'écoulement piston est atteint même à un faible débit (inférieur à 2 mL/min) et un faible Re_o . Le COBR avec un ruban hélicoïdal est alors recommandé pour des applications liquide-liquide.

Dans une étude plus récente, Mazubert et al. (2016) ont analysé l'effet de la géométrie des internes, double ruban hélicoïdal et ruban hélicoïdal alterné, sur l'hydrodynamique

(Tableau I.6, Figure I.11.c, et Figure I.11.f). Les résultats des simulations numériques montrent que le mouvement oscillatoire développé dans le COBR avec un double ruban hélicoïdal est identique à celui développé dans un COBR avec un ruban simple. Cependant, la perte de charge dans le réacteur avec le double ruban est plus élevée. Ce type de COBR permet également d'obtenir un mélange radial.

En ce qui concerne la deuxième géométrie (COBR avec un ruban hélicoïdal alterné), Mazubert et al. (2016) ont observé des lignes de courant parallèles et un nombre de Péclet plus élevée que le Pe d'un réacteur à couronnes ou d'une colonne à disques et couronnes. Les réacteurs avec un ruban hélicoïdal alterné assurent alors un écoulement piston meilleur que celui des deux autres types de COBR.

En ajoutant une tige cylindrique au centre du tube et de l'interne hélicoïdal, des nouveaux tourbillons sont générés (McDonough et al., 2019a). La présence de la tige centrale crée alors des vortex supplémentaires. L'écoulement piston dans les réacteurs avec des internes hélicoïdaux et une tige centrale est comparable à celui obtenu avec une géométrie hélicoïdale sans tige centrale. La Figure I.11.d présente un réacteur avec un fil hélicoïdal et une tige centrale et la Figure I.11.e présente un réacteur avec un ruban hélicoïdal et une tige centrale. Les caractéristiques de ces deux internes ont été listées en Tableau I.5.

McDonough et al. (2019a) ont utilisé la fabrication additive pour imprimer des internes hélicoïdaux et la tige centrale. Ainsi, des supports supplémentaires répartis le long du tube ont été réalisés ; ils génèrent des tourbillons supplémentaires tout en facilitant la fixation de la tige.

Ces mêmes auteurs ont comparé un réacteur avec des disques et une tige centrale à un réacteur avec un fil hélicoïdal (McDonough et al., 2019b). Les caractéristiques du premier interne ont été décrites dans le Tableau I.6. Le deuxième interne est un fil hélicoïdal ayant un diamètre de 5 mm, une épaisseur de 1 mm, et un pas de 7,5 mm (Figure I.29).

L'étude a montré que le premier COBR est caractérisé par des temps de mélange plus élevés que le COBR avec l'interne hélicoïdale. La géométrie hélicoïdale reste plus avantageuse grâce à la génération des tourbillons supplémentaires qui permettent d'atteindre l'écoulement piston plus rapidement.

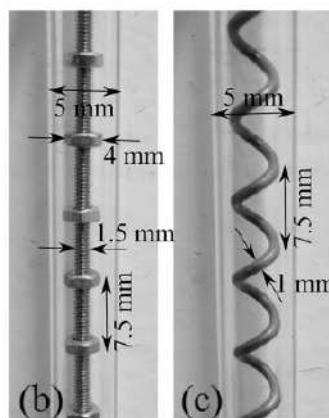


Figure I.29: Les internes des COBR adoptés dans l'étude de McDonough et al. (2019b)

3. La fabrication des structures

Les structures complexes peuvent être fabriquées par les méthodes conventionnelles dites de fabrication soustractive (procédés d'usinage commandés et de soustraction de matière) ou par les nouvelles méthodes de fabrication dite additive, connue aussi sous le nom d'impression 3D. La plupart des structures complexes sont réalisées aujourd'hui avec l'impression 3D, car cette dernière lève en grande partie les limites des technologies de fabrications traditionnelles (le contrôle de la porosité et la limite des paramètres géométriques).

3.1 Impression 3D

La fabrication additive est une technique récente qui vise à développer divers objets complexes en 3D. Les différentes technologies de fabrication additive sont regroupées sous le terme prototypage rapide. Elles permettent de créer des structures de haute résolution et de bonne qualité, malgré la complexité géométrique de leurs designs. Elles sont nombreuses, voici les principales :

- a) Stéréolithographie (SLA)
- b) Fusion sélective par laser (SLM)
- c) Frittage sélectif par laser (SLS)
- d) Dépôt de filament fondu (FDM)

Ces technologies permettent de créer des objets tridimensionnels en superposant plusieurs couches de matière (Mikolajewska et al., 2014), contrôlées par ordinateur. Les dépôts de matières sont classés en trois grandes catégories : la résine liquide, la poudre, et le filament en plastique. Le procédé de stéréolithographie appartient à la première catégorie. Il consiste à projeter un faisceau laser ultraviolet sur la surface de la résine pour la transformer en un polymère solide. Par contre, la SLM et le SLS font partie de la deuxième catégorie. Ces deux procédés permettent la fabrication de l'objet solide grâce à la fusion des particules de poudres à l'aide d'un faisceau laser (Parra-Cabrera et al., 2018). Enfin, avec l'impression par dépôt de fil, un filament en plastique est fondu et extrudé pour former un objet en superposant une couche sur une autre. Le Tableau I.9 présente une comparaison entre trois différentes techniques de fabrication additive et l'injection par moulage (un procédé traditionnel).

Dans notre étude, la FA est considérée comme une technique de fabrication et non pas comme un objet d'étude ; l'objectif est l'optimisation morphologique des solides structurés complexes pour des applications de séparation en premier temps et des applications de mélangeurs et de réacteurs en deuxième temps. La SLA est utilisée pour imprimer des internes hélicoïdaux d'un réacteur oscillatoire continu. Le SLS et la SLM sont utilisés pour fabriquer des garnissages filaires en polyamide et en acier inoxydable, respectivement.

Tableau I.9: Une comparaison entre deux techniques d'impression 3D et une méthode de fabrication traditionnelle

Méthode d'impression 3D	Stérolithographie (SLA)	Fusion sélective par laser (SLM)	Dépôt de filament fondu (FDM)	Injection par moulage (méthode traditionnelle)
Définition	Un faisceau laser UV scanne la surface de la résine afin de consolider le matériau sur un support et créer la structure 3D	Un faisceau laser lie et fusionne les particules de poudre	Le plastique est fondu et rapidement solidifié pour concevoir un objet 3D	Le matériau est mélangé et forcé dans un moule
Précision des machines	±0,01 (élevée)	±0,025 (bonne)	±0,15 (moyenne)	-
Epaisseur des couches	0,06-0,15mm	0,06-0,15mm	0,1-0,3mm	1-4mm
Etat de surface et rugosité	0,5µm (lisse)	(rugueux)	(trop rugueux)	-
Matériaux	Poly1500, Xtreme, etc.	Polypropylène, Alumide, etc.	ABS, Polycarbonate, etc.	Plastiques, métaux, etc.
Avantages de l'objet fabriqué	Détails fins avec un aspect de surface lisse	Des designs complexes (ex : pièces mobiles)	Durabilité de matériaux avec une stabilité mécanique	Excellent état de surface et une tolérance élevée
Inconvénients de l'objet fabriqué	Un peu fragile et sensible à la chaleur	Une surface légèrement granuleuse	Mauvais état de surface	Limitation de la géométrie du modèle

3.2 Les avantages de l'impression 3D

L'impression 3D joue un rôle important dans de nombreux domaines d'application (ex : médical, mécanique, chimie, aéronautique). Cette technique révolutionne la fabrication des pièces et offre une liberté de conception pour la production. En effet, elle optimise à la fois les performances fonctionnelles, le temps d'impression et le coût.

Les avantages de l'impression 3D sont :

- Liberté de conception : la fabrication additive permet de réaliser des pièces complexes de différentes tailles et géométries avec des matériaux divers : résine, plastique, textile, bois, verre, et métal. Elle élimine toute une partie du procédé traditionnel de fabrication et ses limitations.

Chapitre I : Etat de l'art : Structures d'internes complexes pour des technologies de génie des procédés

- Qualité du produit : la qualité de l'impression dépend des imprimantes. De nos jours, des objets tridimensionnels avec une très bonne qualité de finition sont fabriqués à l'aide des imprimantes professionnelles.
- Résolution et précision : la FA propose de réaliser des objets avec une haute résolution et un très haut degré de précision ($\pm 0,01$ pour la SLA, Tableau I.9). Ces objets possèdent des détails fins impossibles à obtenir avec les méthodes conventionnelles.
- Prototypage rapide : l'impression 3D permet la conception rapide de prototype à travers des imprimantes qui sont capables de fabriquer l'objet en continu et de manière autonome.
- Economie : le gain financier est aussi un critère majeur pour les industries.

L'impression 3D présente aussi quelques inconvénients, liés principalement à la taille des objets à imprimer, l'état de surface, et les matériaux. Toutefois, l'industrie continue à avancer pour pousser les limites des matériaux plus loin.

Grâce à ces avantages, la fabrication additive a été adoptée récemment par les industries, particulièrement en génie des procédés (ex : distillation, membrane, absorption, réacteur) (Mardani et al., 2016). Comme montre la Figure I.30, un nombre croissant d'articles ont été publiés durant ces dernières années sur la fabrication des objets en 3D et leurs rôles dans l'industrie du génie des procédés (Kalsoom et al., 2018). Le nombre de publications est toujours en croissance.

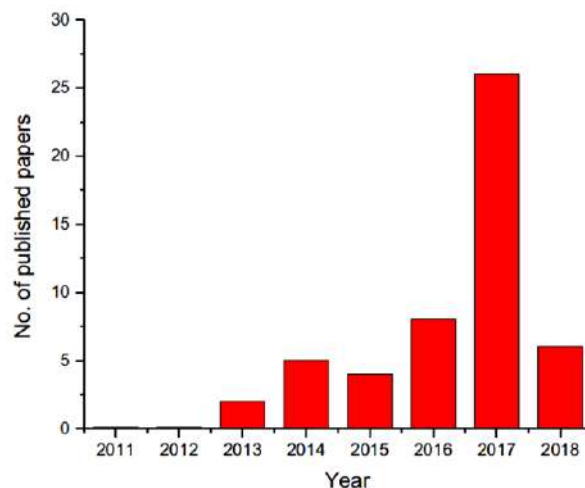


Figure I.30: Nombre de publications sur l'impression 3D au service du génie des procédés pour les années 2011 à 2018 (Kalsoom et al., 2018)

4. Conclusion

Les structures complexes sont largement utilisées dans de multiples applications dans l'industrie du génie des procédés. Il existe plusieurs types de structures complexes. Chaque type de structures se caractérise par des paramètres géométriques spécifiques qui aident à définir leurs applications. Dans notre étude, nous nous intéressons au développement de structures complexes (garnissages) pour des colonnes de séparation et au développement des internes pour des réacteurs oscillatoires continus (COBR).

Au fil du temps, les garnissages classiques (à base de plaques) ainsi que les internes des réacteurs et des mélangeurs ont été modifiés en vue de rechercher des structures performantes. Toutefois, la géométrie de ces structures est la plupart du temps déterminée en se basant sur les potentialités des technologies de fabrication, et non sur la nécessité d'obtenir des structures innovantes avec des performances optimales. Un grand nombre des structures existantes sont fabriquées par des méthodes de fabrication traditionnelles dites soustractives. Ces méthodes de fabrication limitent la possibilité d'avoir un rendement optimal. Par exemple, malgré le nombre relativement élevé d'études menées sur les garnissages à base de plaques métalliques, la géométrie de ces structures est toujours semblable à celle des structures de référence (ex : internes formés de tôles corruguées comme le Mellapak, le Montzpak, et le Flexipac).

L'enjeu est alors de créer de nouvelles structures complexes ayant (i) une géométrie totalement différente de la géométrie des internes précédents et (ii) des performances hydrodynamiques et de transfert de matière intéressantes ou (ii) un degré de mélange important. La fabrication mécanique traditionnelle a longtemps limité la réalisation de certaines structures géométriques complexes ; l'impression 3D (ou la fabrication additive) va être employée pour lever cette limitation.

Chapitre II : Matériel et Méthodes - Garnissages filaires en distillation

Ce chapitre exposera la méthodologie de travail adoptée pour optimiser les structures à géométrie complexe (garnissages Tetrasplines TS à base de fil de section cylindrique). Il présentera dans un premier temps les étapes de la conception des structures en 3D. Dans un deuxième temps, il décrira les approches utilisées pour évaluer les caractéristiques géométriques des objets imprimés ainsi que les dispositifs expérimentaux mis en place pour caractériser leurs performances (performances hydrodynamiques et de transfert de matière). Les différentes méthodes adoptées pour la modélisation des performances et l'optimisation morphologique des structures seront finalement détaillées.

1. Méthodologie de travail

L'objectif du présent travail est l'optimisation morphologique des solides structurés complexes, réalisés par la fabrication additive, pour des applications de séparation et de mélange. La méthodologie est présentée en Figure II.1 et est divisée en quatre parties distinctes, la conception des solides structurés complexes, la caractérisation des objets, la modélisation des performances, et l'optimisation morphologique.

La partie "conception" consistera à définir les propriétés d'usage vis-à-vis du procédé chimique afin de choisir l'objet fonctionnel de la bibliothèque ou de construire un nouvel objet. Dans les deux cas, une modélisation morphologique est effectuée à travers des logiciels de dessin 3D. L'objet est ensuite imprimé par les méthodes de fabrication additive.

La deuxième partie consistera à caractériser morphologiquement les objets imprimés en remesurant les paramètres géométriques clés. Ensuite, une caractérisation des performances est réalisée sur les bancs d'essais existants. Les structures 3D étudiées seront les internes Tetrasplines (TS) à base de fils de section cylindrique. Ce sont des garnissages filaires adoptés pour des applications de séparation.

Dans la partie "modélisation", des corrélations traduisant les performances des structures seront développées à l'aide d'une analyse dimensionnelle. Une fois les corrélations validées, les méthodes d'optimisation morphologique permettront d'obtenir un design optimal. Un lien entre les propriétés d'usage (performances hydrodynamiques et efficacité en transfert de matière) et les caractéristiques géométriques et morphologiques des garnissages (diamètre et longueur des fils, surface spécifique, taux de vide) sera formalisé à travers plusieurs corrélations. L'objectif final est d'optimiser morphologiquement ces structures complexes après avoir développé une méthode adéquate pour leur conception.

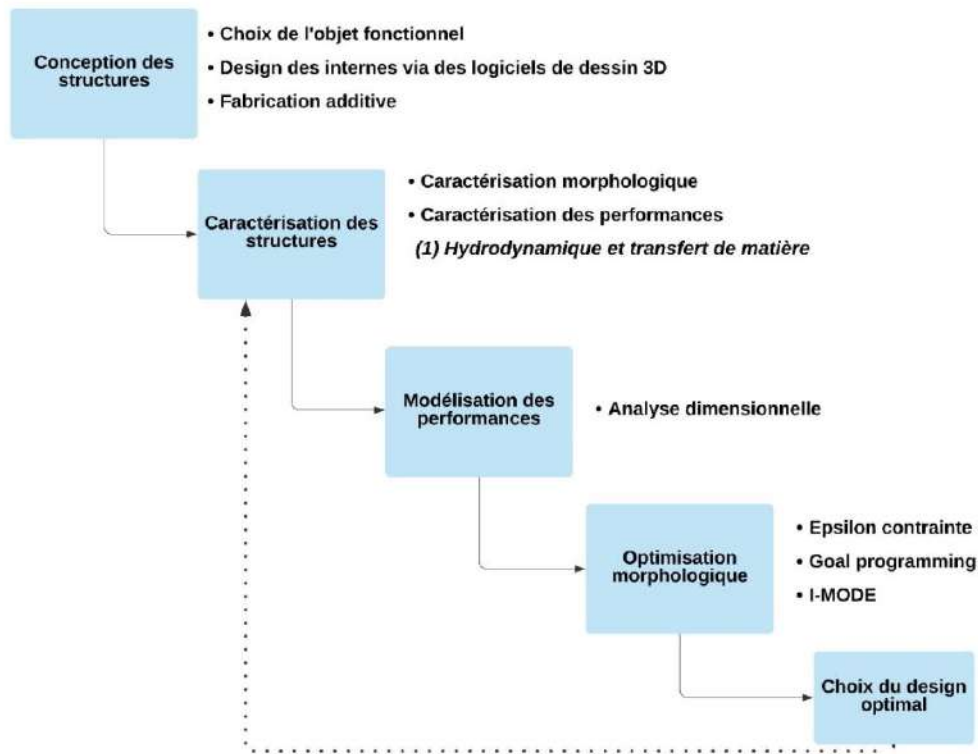


Figure II.1: La méthodologie adoptée pour l'optimisation morphologique des structures complexes

2. Conception des structures complexes

Une modélisation morphologique est effectuée à travers des logiciels de dessin 3D, nommé logiciel de CAO, pour Conception Assisté par Ordinateur. Parmi ces logiciels, on trouve Autodesk Inventor, Fusion 360, AutoCAD, etc. Dans nos travaux, les dessins 3D sont réalisés à l'aide du logiciel Autodesk Inventor. C'est un logiciel bien connu de CAO et de modélisation 3D qui offre plusieurs avantages. Il permet (1) de créer des structures en utilisant une bibliothèque d'éléments et de matériaux prédéfinis, (2) de modifier facilement les paramètres géométriques des structures dessinées afin de concevoir des configurations différentes, (3) de calculer les propriétés générales de ces structures (aire, volume, masse), (4) de créer des modèles d'assemblage complexes et de modifier leurs propriétés.

L'objectif du logiciel est d'obtenir un fichier 3D en format STL (*Standard Tessellation Language*). C'est un format standard et spécifique qui se présente sous la forme d'un maillage et qui décrit la géométrie de surface de la pièce tridimensionnelle. Ce fichier STL est découpé en plusieurs parties ; chaque partie représente une portion du modèle à imprimer. Le modèle 3D est ensuite transformé en un objet solide à l'aide d'une imprimante 3D. En général, toutes les imprimantes construisent l'objet en superposant verticalement les différentes couches de matières. La différence se situe sur la manière dont l'effectue le dépôt et sur la manière de

traitement de ses couches, ainsi que le type de matériau adopté. Le type d'imprimante et la méthode d'impression dépendent des contraintes des structures à fabriquer.

Les contraintes majeures des garnissages sont les suivantes : a) bonne résistance à haute température ($T = 90^{\circ}\text{C}$ pendant 6-7 heures), b) bonne résistance aux produits chimiques (cyclohexane et n-heptane), c) mouillabilité élevée, d) épaisseur des fils de minimum 0,2 mm, e) dimension des pièces 145x100 mm. Ces contraintes nous ont ramené à utiliser le procédé de frittage sélectif par laser (SLS) pour imprimer une partie des internes en polyamide et le procédé de fusion sélective par laser (SLM) pour imprimer l'autre partie des garnissages en acier inoxydable.

Les différentes structures imprimées ainsi que leurs caractéristiques géométriques seront présentées en chapitres III.

3. Caractérisation des structures complexes

3.1 Caractérisation morphologique

Suite à l'impression 3D, la finition et le post-traitement des pièces imprimées comprend généralement trois étapes essentielles, le retrait des objets du plateau de l'imprimante, l'élimination des supports d'impression, et le dépoufrage pour la SLM et le SLS. Le retrait des structures s'agit d'un essai de choc thermique consistant à refroidir le modèle fabriqué pour le retirer facilement du plateau de l'imprimante 3D. La deuxième étape nécessite l'élimination des supports de soutien au moyen des pinces coupantes tandis que la troisième étape consiste à éliminer l'excès de poudre qui recouvre la surface des structures. Dans le cas où la pièce adhérerait fortement sur le plateau, les supports sont mal coupés, ou le procédé de dépoufrage est mal exécuté, les étapes de post-traitement risquent de modifier les caractéristiques morphologiques des structures imprimées.

Vu le problème qui peut avoir sur la caractérisation morphologique, les deux paramètres clés des internes Tetrasplines, la surface spécifique et le taux de vide, peuvent être modifiés. Pour avoir accès à ces valeurs, les diamètres des fils des TS sont systématiquement mesurés après chaque impression pour évaluer l'écart entre le dessin numérique et l'objet final et pour identifier les nouvelles valeurs de la surface spécifique et du taux de vide.

Les diamètres des fils sont mesurés à l'aide d'un pied à coulisse digital, en effectuant 70 mesures pour les fils localisés en face latérale du garnissage et 70 autres pour les fils de la base supérieure. Le diamètre réel, noté d_{fil} (m), sera alors la valeur moyenne de ces mesures. A partir de ce nouveau diamètre de fils d_{fil} (m), la surface spécifique est recalculée par Autodesk Inventor.

Pour le taux de vide, il est (i) recalculé par le logiciel Autodesk Inventor avec d_{fil} et (ii) estimé par une mesure expérimentale. Cette dernière consiste à :

1. Mesurer le poids du garnissage sec avec une balance de précision (m_1 en kg)
2. Calculer le volume du garnissage (V_{sol} en m^3) avec H et D_{gar} présentant respectivement la hauteur et le diamètre d'un seul garnissage

$$V_{sol} = \pi \frac{(D_{gar})^2}{4} H \quad (II.1)$$

3. Calculer la masse totale de l'échantillon (m_t en kg) avec $\rho_{PA} = 950 \text{ kg/m}^3$ et $\rho_{Inox316L} = 7960 \text{ kg/m}^3$

$$m_t = \rho_x V_{sol} \quad (II.2)$$

4. Calculer le taux de vide (ε)

$$\varepsilon = 1 - \frac{m_1}{m_t} \quad (II.3)$$

Finalement, l'erreur absolue de ε est évaluée en appliquant la loi de propagation des incertitudes sur l'ensemble des données expérimentales $\{m_1, H, D_{gar}, \rho_x\}$ (détails en Annexe A).

Le taux de vide final de chaque interne est la moyenne de (ii) et (i), puisque les valeurs évaluées par mesure expérimentale sont proches des valeurs déterminées par Autodesk Inventor.

3.2 Caractérisation des performances

3.2.1 Etude hydrodynamique

Les performances hydrodynamiques des garnissages (la perte de charge et l'engorgement) sont évaluées expérimentalement par le tracé des pertes de charge en écoulement gaz liquide à contre-courant.

3.2.1.1 Dispositif expérimental

Le pilote expérimental au LGC pour mesurer la perte de charge consiste en une colonne en verre de diamètre interne 150 mm et de longueur 1 m où le gaz et le liquide circulent à contre-courant (Figure II.2 et Figure B.1 en Annexe B). Le système diphasique utilisé sera un système d'air et eau sous une pression atmosphérique et à température ambiante. D'autres essais sont aussi effectués en remplaçant l'eau dans le bac d'alimentation avec un mélange eau-glycérol (21 wt% glycérol) afin de compléter les corrélations avec des systèmes possédant des propriétés physico-chimiques différentes (ex. viscosité, masse volumique) (Tableau III.4).

Le liquide est envoyé en tête de colonne par une pompe (1) liée à un réservoir d'alimentation (6) (Figure II.2). Le débit liquide est mesuré par un débitmètre liquide (2) "Brooks Instruments GT1000" présentant une erreur de mesure de 2,5% pour une gamme de débit allant de 0 à 378 L/h. La distribution du liquide est assurée par un distributeur spécifique (3) qui va garantir une répartition uniforme du liquide sur toute la section du garnissage (Figure II.3.b). Pour les Tetrasplines, un plateau distributeur ayant 3400 trous/m² est choisi (Rouzineau et al., 2020). Le distributeur choisi est imprimé en 3D; il est conçu de manière à permettre au liquide d'être directement divisé sur des fils. Sur chaque trou d'une plaque perforée, un fil est attaché (Figure II.3.b). Le fil est ensuite divisé en de nombreux autres fils afin de bien répartir le liquide sur les garnissages (Kawas et al., 2021a). En outre, des colliers sont insérés autour de chaque garnissage (Figure II.3.a) afin de minimiser l'écoulement préférentiel à la paroi.

Le débit d'air est alimenté en pied de colonne et est mesuré par un débitmètre à flotteur (7) "Brooks MT3809 Series" présentant une erreur de mesure de 2%. L'effet de perturbations induites par l'entrée de l'air est minimisé en ajoutant 1m de colonne non garnie (4.2) au-dessous de la partie supérieure occupée de garnissages (4.1). Grâce à cette partie non garnie, le flux d'air sera distribuée d'une manière homogène sur toute la longueur.

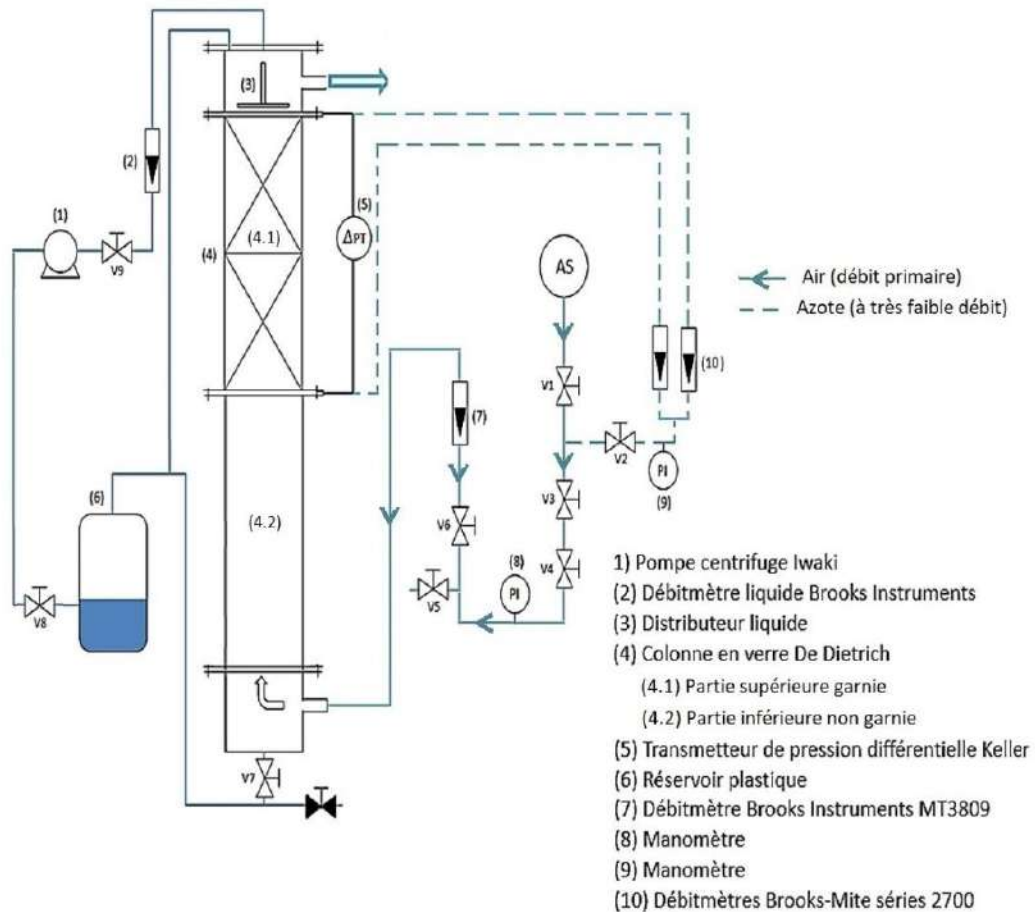


Figure II.2: Schéma du pilote de mesure de la perte de charge et de l'engorgement

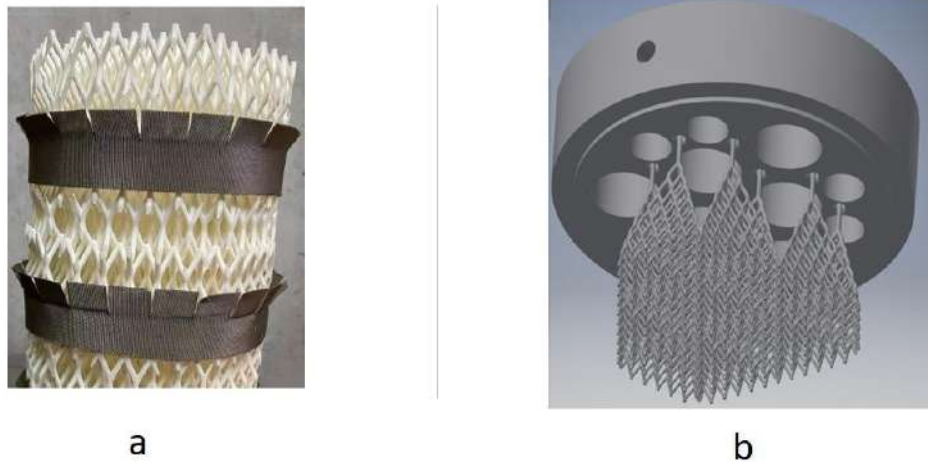


Figure II.3: (a) : Photo des colliers de serrage, (b) : Distributeur liquide en 3D

3.2.1.2 Mesure de la perte de charge

La mesure de la perte de charge des internes est réalisée grâce à un transmetteur (5) "Keller Série 30 " de pression différentielle entre les extrémités basses et hautes de la partie garnie de la colonne (Figure II.2). Le transmetteur de pression est muni d'un indicateur de pression numérique (EV-120). Ces deux appareils forment une chaîne de mesure de haute précision (0,01%). Un logiciel CCS30 (*Control Center Series 30*) permet de sauvegarder les mesures et d'afficher graphiquement les signaux de pression sur un ordinateur. Le traitement de la mesure brute de la perte de charge se fait en utilisant le logiciel Matlab (Annexe C). Les données sont filtrées en calculant la valeur moyenne et la médiane pour un ensemble de points (pour un débit liquide et gaz constant). Un test de Student est effectué pour supprimer les valeurs aberrantes et déterminer les différentes zones où l'état stable est atteint. Les valeurs des pertes de charge filtrées sont ensuite liées à leurs vitesses de gaz correspondantes. Un exemple montrant le profil de la perte de charge pour un système diphasique (données en entrée et données filtrées) en fonction du temps est illustré en Figure II.4.

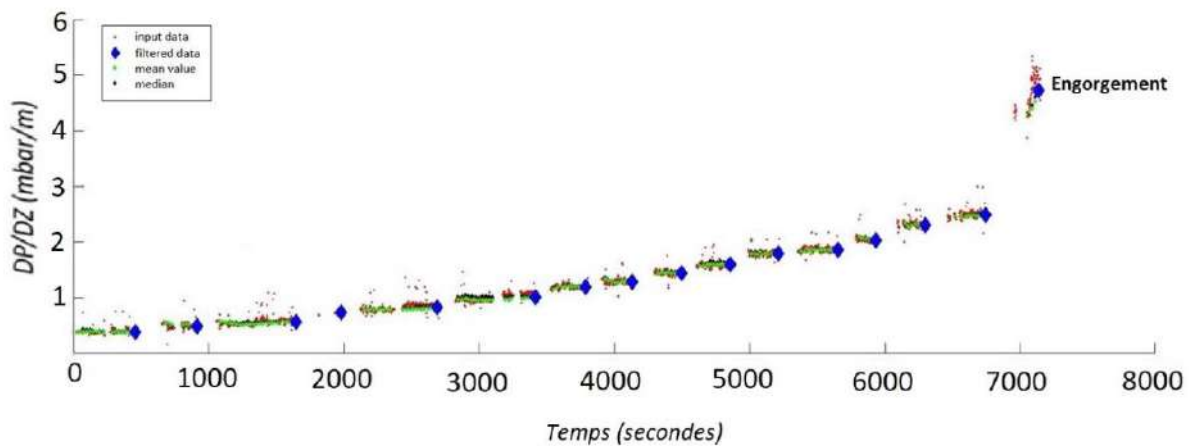


Figure II.4: Perte de charge pour un système diphasique en fonction du temps. Les plateaux verts représentent un ensemble de points ayant un débit liquide et gaz constant.

Une première mesure pour la caractérisation hydrodynamique est réalisée sur les garnissages secs avec différentes vitesses superficielles du gaz allant de 0 à 3 m/s. Les autres mesures sont effectuées avec plusieurs débits liquides (162 – 270 – 378 L/h respectivement) en augmentant le débit de l'air jusqu'à l'engorgement de la colonne. Avant de commencer les mesures, la colonne se démarre en circulant seulement le liquide à un débit élevé, pendant quelques minutes, afin de bien mouiller le garnissage. La perte de charge sera ensuite mesurée toutes les 7 min jusqu'à stabilisation.

Les résultats finaux de l'évolution de la perte de charge seront reportés en fonction du débit massique unitaire de gaz G (kg/s.m^2). Ils peuvent également être représentés en fonction d'un facteur F ($\text{Pa}^{0.5}$). Ce dernier est proportionnel à G ; il est défini comme étant le produit de la vitesse superficielle du gaz noté U_{gaz} (m/s) par la racine carrée de la masse volumique du gaz noté ρ_{gaz} (kg/m^3) :

$$F = U_{\text{gaz}} \sqrt{\rho_{\text{gaz}}} \quad (\text{II.4})$$

3.2.1.3 Détermination des points de charge et d'engorgement

La Figure II.5 montre la variation du $\log(\frac{\Delta P}{Z})_G$ en fonction du $\log G$ pour plusieurs débits massiques unitaires de liquide, noté L (kg/s.m^2).

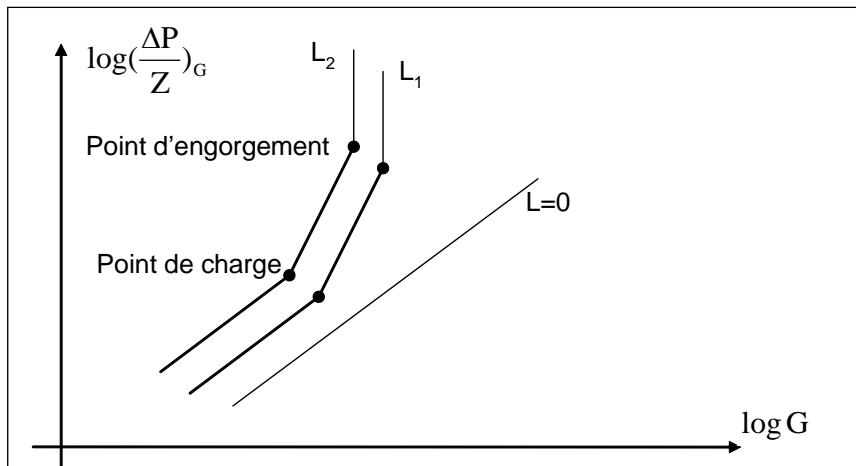


Figure II.5: Représentation de la perte de charge en fonction des débits gaz et liquide

La courbe $L=0$ représentative d'un garnissage à sec se confond pratiquement avec une droite de pente égale à deux. Cela est en accord avec la relation développée par Ergun (1952) pour la mesure de la perte de pression d'un fluide au travers d'un lit de particules.

Pour les courbes L_1 et L_2 établies à des débits de liquide fixes (avec $L_2 > L_1$), des zones différentes apparaissent pour différent débit gaz. Ainsi, trois zones caractéristiques de fonctionnement sont observées :

- Zone 1 : Avec de faible valeur de G , la perte de charge augmente linéairement en conservant une valeur quasi constante de la rétention liquide opératoire, noté h (%).

Dans ce cas, le film liquide formé à la surface de chaque interne est assez mince pour qu'il demeure sensiblement indéformable par le courant gazeux. La courbe de la zone 1 sera parallèle à la courbe du garnissage à sec ayant une pente = 2. Le point final de cette zone est nommé point de charge ; c'est le point où la partie de linéarité s'arrête (Figure II.5).

- Zone 2 : Avec des débits gaz plus élevés, l'augmentation de la perte de charge continue d'une façon significative avec un accroissement de la rétention liquide. Ce phénomène est accompagné par une apparition de rides à la surface du film liquide.
- Zone 3 : Au-delà d'une valeur de G spécifique à chaque L , les frictions sont telles que le liquide est totalement retenu dans le garnissage jusqu'à la colonne demeure dans des conditions instables. On arrive ainsi à l'engorgement. Un exemple de la position des points d'engorgement est illustré en Figure II.5.

Pour les corrélations de caractérisation hydrodynamique, les points de charges sont déterminés de deux façons :

1. Avoir une pente égale à deux pour la droite de la zone 1 représentant la variation du $\log(\Delta P/\Delta Z)$ en fonction du $\log G$ avant point de charge (Spiegel et Meier, 1992).
2. Se situer à 60% par rapport à l'engorgement (Wang et al., 1967).

Les deux méthodes de détermination du point de charge se concordent pour tous les essais effectués.

Le point d'engorgement est identifié par une augmentation soudaine et très forte de la perte de charge (à 7100 secondes pour cet exemple) (Kawas et al., 2021a).

3.2.2 Etude de transfert de matière

L'efficacité en transfert de matière (la capacité de séparation gaz liquide) des internes est déterminée par l'évaluation de la Hauteur Equivalente à un Plateau Théorique, appelée HEPT.

3.2.2.1 Dispositif expérimental

Le Fractionation Research Inc. (FRI) et le Separation Research Program (SRP) définissent des méthodologies expérimentales standards pour la détermination de la HEPT d'un garnissage. Cette mesure s'effectue au moyen d'une séparation d'un mélange binaire dans une colonne à distiller. Cette dernière fonctionne à reflux total, c'est-à-dire sans alimentation ni sortie du résidu et du distillat. La Figure II.6 et la Figure B.2 en Annexe B représentent le pilote expérimental de distillation du LGC. C'est une colonne pilote en verre d'un diamètre interne de 150 mm pour une hauteur garnie de 1 mètre. Le liquide est distribué au-dessus du garnissage avec le même plateau distributeur en 3D (3400 trous/m²) utilisé dans l'étude hydrodynamique (Figure II.3.b).

3.2.2.2 Mesure de la HEPT

Le mélange binaire choisi pour nos expériences est le cyclohexane/n-heptane à la composition initiale de 20% massique en cyclohexane dans le bouilleur (Tableau III.4). C'est un des mélanges standards pour la mesure de la HEPT défini par le Fractionation Research Inc. (FRI). De plus, ce système est largement utilisé et cité dans la littérature (Subawalla et al., 1997 ; Olujić et al., 2000).

La procédure consiste à engorger la colonne pour bien mouiller le lit de garnissage. Ensuite, l'engorgement sera diminué de 20% pour désengorger la colonne à distiller et se placer à une valeur de puissance adéquate pour les essais. Le mélange dans le bouilleur est chauffé par un serpentin alimenté par la vapeur. Cette vapeur est générée par une chaudière électrique produisant de la vapeur à 8 bars. Les vapeurs du système arrivant en tête de colonne sont refroidies à l'aide d'un condenseur, utilisant l'eau du réseau. La différence de pression est mesurée entre le premier et le dernier garnissage (Figure II.6). Cette dernière mesure détermine la perte de charge du garnissage, ce qui donne une idée de sa capacité sans effectuer la caractérisation hydrodynamique. Les pertes thermiques de la colonne sont estimées autour de $1,25 \pm 0,11$ kW.

Des mesures de température sont réalisées durant les expériences aux différents endroits de la colonne, au niveau du bouilleur, condensat, distillat, et en haut de section de la colonne (Figure II.6). La stabilité de ces températures indique que le régime permanent est atteint.

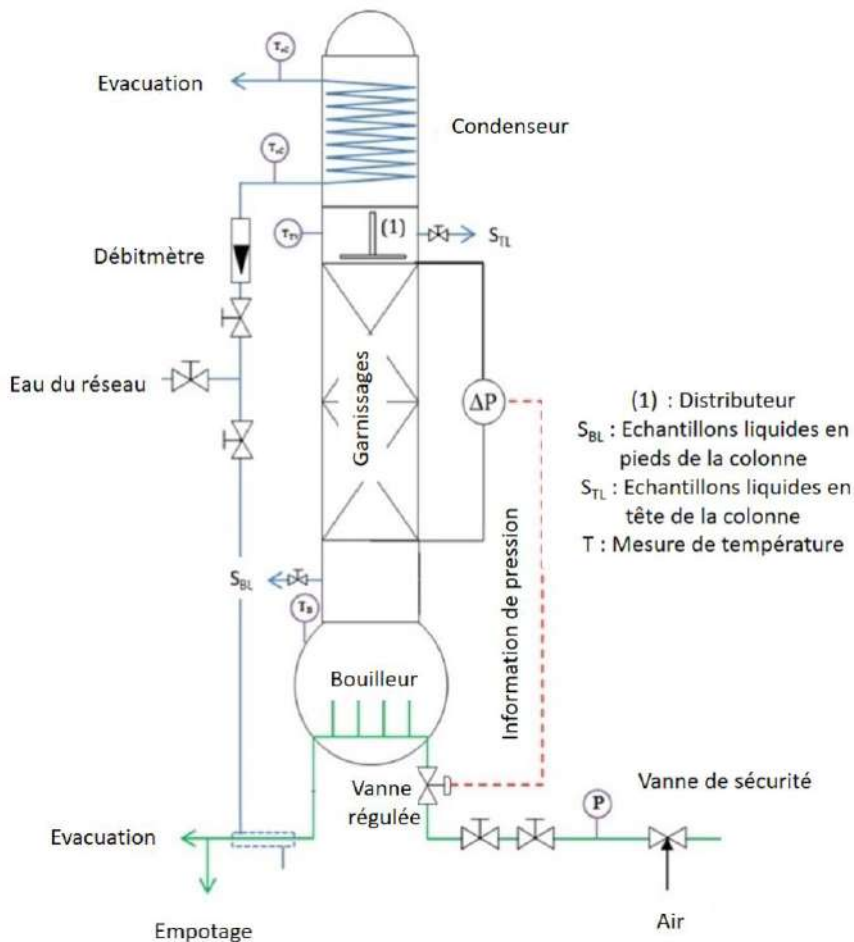


Figure II.6: Schéma du pilote de mesure de la HEPT

Des échantillons liquides en tête (S_{TL}) et en pied de la colonne (S_{BL}) sont prélevés durant la distillation toutes les 20 minutes environ. Afin d'obtenir des échantillons représentatifs, un tube capillaire est placé directement au-dessous du distributeur liquide pour garantir que le liquide seulement est prélevé pour le S_{TL} (sans aucune trace du gaz). Pour l'échantillon liquide S_{BL} , une gouttière est installée sous le dernier garnissage en bas de la colonne de distillation (Kawas et al., 2021a). Les échantillons (S_{TL} et S_{BL}) sont analysés par

réfractométrie à l'aide d'un densimètre électronique (erreur $\pm 0,001\text{g/cm}^3$). Les mesures de composition des deux échantillons liquides permettent de déterminer la HEPT et de garantir que le régime permanent est établi lorsque les compositions aux différents points du système ne varient plus. Toutes les mesures sont réalisées pour différentes valeurs de puissances de chauffe correspondant à des facteurs F différents (une gamme de puissance allant de 3 à 28 kW et des facteurs F allant de 0,2 à 2,66 $\text{Pa}^{0.5}$).

3.2.2.3 Calcul de la HEPT

Pour chaque expérience, la HEPT est déterminée en examinant le diagramme binaire liquide-vapeur du mélange cyclohexane/n-heptane sous pression atmosphérique. Le modèle thermodynamique sélectionné est le modèle de Wilson. Concernant notre mélange organique, les coefficients d'interaction binaire (selon le modèle de Wilson) sont $A_{ij0} = 101,6831$ et $A_{ji0} = -41,6534$ (Komori et Ohe, 1990).

La hauteur équivalente à un plateau théorique est donc déterminée analytiquement en utilisant les compositions des deux échantillons liquides. Elle est calculée via une méthodologie qui évite l'utilisation de la formule de Fenske et l'hypothèse de la volatilité constante entre le pied et la tête de la colonne. La méthodologie adoptée est décrite ci-dessous (Bessou et al., 2010) (Kawas et al., 2021a).

La HEPT est définie comme :

$$\text{HEPT} = \frac{\text{Hauteur du garnissage}}{\text{NET}} \quad (\text{II.5})$$

La hauteur du garnissage est exprimée en m. Le NET est le Nombre d'Etages Théoriques, c'est-à-dire le nombre d'étages théoriquement requis pour réaliser une séparation d'un mélange. Il est égal à :

$$\text{NET} = (n - 1) + \left(\frac{x_{n-1} - x_w}{x_{n-1} - x_n} \right) \quad (\text{II.6})$$

avec x_n la fraction molaire liquide du plateau n et x_w la fraction molaire au résidu.

La fraction molaire liquide du plateau n (x_n) est calculée à l'aide de la courbe d'équilibre du système cyclohexane/n-heptane (donc, en utilisant y_n). Cette dernière (y_n) est égale à x_{n-1} , puisque tous les essais sont menés à reflux total. La fraction molaire vapeur (y_{n+1}) est calculée en effectuant un bilan matière sur le plateau n. y_{n+1} sera égale à x_n (reflux total). Ces calculs sont appliqués sur chaque plateau jusqu'à ce que x_n (fraction molaire liquide calculée) devient inférieure à la composition du liquide mesurée en pied de colonne de distillation (S_{BL}). Par exemple, pour calculer les fractions molaires du premier plateau, il faut commencer par déterminer la fraction molaire liquide de la sortie (x_1). x_1 est calculée à l'aide de la courbe d'équilibre et y_1 . y_1 est égal à x_0 (S_{TL}). La fraction molaire vapeur (y_2) est alors calculée en effectuant un bilan de matière sur le plateau numéro 1. y_2 est de nouveau considéré égal à x_1 (reflux total).

Les résultats expérimentaux de la HEPT exprimée en mètre (m) seront reportés en fonction du facteur F ($\text{Pa}^{0.5}$) avec une erreur maximale de 6% sur la valeur obtenue. L'évolution

théorique de la HEPT en fonction de ce facteur F pour un garnissage donné est présentée en Figure II.7 (Kister (1992), Bennet (2000)). Cette allure montre que la HEPT diminue initialement avec l'augmentation de F jusqu'à atteindre une zone stable où elle devient constante. Une augmentation du transfert de matière aura lieu juste avant la valeur limite représentant l'engorgement. Pour nos études, une seule valeur de la HEPT est sélectionnée pour chaque structure TS; elle correspond à la zone stable où la HEPT est constante (Figure II.7).

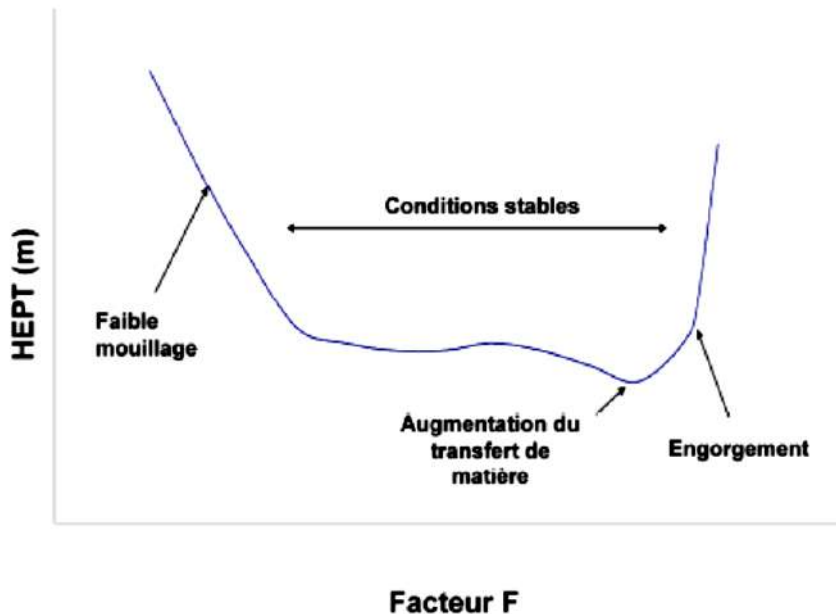


Figure II.7: L'évolution théorique de la HEPT en fonction de F

3.2.2.4 Influence du diamètre de la colonne

Les deux colonnes pilotes de mesure de la perte de charge et de la HEPT ont un diamètre interne de 150 mm. De nombreuses recherches ont été menées sur l'influence du diamètre de la colonne sur les résultats expérimentaux hydrodynamiques et de transfert de matière (Kawas et al., 2021a).

Olujić (2008) et Ottenbacher et al. (2011) proposent un diamètre de colonne minimal de 400 mm pour obtenir des mesures correspondantes et assez significatives de la HEPT. Néanmoins, Kister (1992), Meier et al. (1979), et Valenz et al. (2013) ont démontré que les mesures de l'efficacité d'un garnissage structuré ne sont pas influencées par le diamètre de la colonne. Par exemple, Valenz et al. (2013) ont mesuré la HEPT du Mellapak 250Y à travers une séparation d'un mélange binaire (cyclohexane/n-heptane) dans une colonne à distiller à reflux total (diamètre interne 150 mm). Les valeurs obtenues sont comparées aux résultats du Fractionation Research Inc. (FRI) qui ont effectué les mêmes mesures dans une colonne de distillation de diamètre 1,2 m. L'utilisation de différents diamètres de colonne ne montre aucune influence sur la HEPT (0,36 m et 0,34 m, respectivement).

L'influence du diamètre de la colonne sur les résultats hydrodynamiques a été démontrée par Olujić (2008) et Mackowiak (2010). Les travaux du dernier ont montré que la perte de charge

du Mellapak 250Y pour un système monophasique augmente de 35% en diminuant le diamètre de la colonne de 1 m à 155 mm. D'un autre côté, Valenz et al. (2013) ont comparé les résultats de la perte de charge du Mellapak 250Y pour un système diphasique dans une colonne de diamètre 150 mm aux données de la perte de charge du FRI (diamètre = 1,2 m). Ils ont observé une faible influence du diamètre de la colonne (moins de 15%) sur les mesures de la perte de charge avant le point de charge.

Pour nos garnissages filaires, les effets de bords et l'influence du diamètre de la colonne sur les résultats hydrodynamiques et de transfert de matière sont considérés négligeables pour les raisons listées en-dessous (Kawas et al., 2021a) :

- la conception et le design des Tetrasplines ainsi que les colliers insérés autour de chaque garnissage (Figure II.3.a) minimisent l'écoulement préférentiel sur les parois internes de la colonne,
- la comparaison des données du FRI (diamètre = 1,2 m) avec les résultats du Mellapak 250Y obtenus avec notre pilote expérimental de distillation (diamètre = 150 mm) ne montre aucune influence du diamètre de la colonne et des effets de bords qui peuvent exister dans une colonne de faible diamètre.

Il faut noter que dans le cas de colonnes de petit diamètre, les coûts de fonctionnement ainsi que le temps de démarrage et d'installation du pilote expérimentale sont réduits. Pour cela, les établissements universitaires ont tendance à mesurer la perte de charge et la HEPT dans des colonnes d'environ 150 mm de diamètre (Kawas et al., 2021a).

4. Modélisation des performances

4.1 Analyse dimensionnelle

L'objectif du présent travail est d'établir des corrélations qui prédisent les performances des objets structurés complexes mesurées expérimentalement. Dans nos études, l'analyse dimensionnelle (AD) est utilisée pour développer ces corrélations. L'AD est une méthode généralement employée pour la détermination de nombres adimensionnels caractérisant l'interaction entre deux (ou plusieurs) phénomènes physiques. Elle peut aussi être utilisée comme outil de vérification afin de tester la validité et l'homogénéité d'une expression.

Les règles fondatrices appliquées pour construire l'ensemble des nombres adimensionnels sont listées ci-dessous (Romain et al., 2014).

1. Choix de la variable cible et liste des grandeurs physiques :

La variable cible (encore nommée variable d'intérêt) " π_{cible} " est la variable caractéristique du phénomène étudié. De nombreux paramètres ou grandeurs physiques (GP) peuvent affecter cette variable d'intérêt. Ils sont uniquement déterminés par affaire de jugement ; aucune règle est appliquée pour guider cette étape méthodiquement. C'est un jugement fondé sur l'expérience et la connaissance des causes et des effets du phénomène examiné. Les grandeurs physiques choisis doivent être indépendantes les unes des autres.

2. Matrice aux dimensions :

Une matrice aux dimensions notée D est construite afin de déterminer les dimensions des grandeurs physiques listées dans la première étape en terme des différentes dimensions de base. Comme illustrée au Tableau II.1, la matrice est formée d'un nombre de colonnes représentant toutes les grandeurs physiques choisis précédemment ($GP_1, GP_2 \dots GP_m$) et d'un nombre de lignes représentant les dimensions fondamentales (ou de base) nécessaires pour exprimer chaque grandeur physique.

Soit " m " le nombre des grandeurs physiques adoptées et " n_d " le nombre des dimensions fondamentales. Ils existent sept dimensions fondamentales du système international, la longueur, le temps, la masse, la température, la quantité de matière, l'intensité de courant électrique, et l'intensité lumineuse. On utilisera dans notre cas la longueur [L], le temps [T] et la masse [M] (donc, $n_d = 3$). Ces trois dernières dimensions sont associées respectivement à leurs unités fondamentales : mètre (m), seconde (s) et kilogramme (kg). Par exemple, si la vitesse cinématique (exprimée en m/s) est considérée comme une grandeur physique (GP_1 , Tableau II.1), elle aura pour dimension $[L.T^{-1}]$. L'unité de mesure de cette grandeur physique est composée par un produit de puissance de certaines unités fondamentales, elle est alors appelée une unité dérivée (ou unité secondaire).

Tableau II.1: La matrice aux dimensions D

	Grandeurs physiques		
Dimensions de base	GP_1 (ex : vitesse cinématique)	GP_2	GP_m
Longueur [L]	1		
Temps [T]	-1		
Masse [M]	0		

3. Jeu de variables répétées :

Parmi les grandeurs physiques déjà listées, un choix libre de variables sera pris à condition qu'elles soient toutes indépendantes et couvrent l'ensemble des dimensions fondamentales. Ces variables physiques sont appelées variables répétées de symbole $V_{j,rep}$ (avec j entre 1 et n_d) tandis que les autres restantes sont considérées des variables non répétées $V_{i,non-rep}$. Afin de déterminer les nombres adimensionnels π_i , chaque $V_{i,non-rep}$ est divisée par un produit de $V_{j,rep}$ élevées à des exposants différents notés a_{ij} (pouvant être nuls). L'expression des nombres sans dimension sera donc :

$$\pi_i = \frac{V_{i,non-rep}}{\prod_{j=1}^{n_d} (V_{j,rep})^{a_{ij}}} \quad (II.10)$$

où $i \in [1 ; m - n_d]$

4. Réarrangements des nombres sans dimension :

L'espace des π_i obtenus est modifié par des opérations mathématiques (ex. soustraction, multiplication, élever à une puissance). L'objectif est d'élaborer des nombres

adimensionnels bien adaptés dans nos études et ayant une signification physique connue (ex. nombre de Reynolds).

Une forme algébrique renfermant un monôme est couramment choisie pour relier la variable cible avec les nombres adimensionnels :

$$\pi_{\text{cible}} = C \cdot \pi_i^{e_1} \cdot \pi_{i+1}^{e_2} \dots \pi_{m-n_d}^{e_{m-n_d}} \quad (\text{II.11})$$

Ces 4 règles d'analyse dimensionnelle sont illustrées à travers plusieurs exemples dans chapitre III (2.2).

4.2 Identification de la constante et des exposants

Un couplage de l'expérience avec l'analyse dimensionnelle est indispensable pour établir la relation entre les nombres sans dimension et déterminer la constante C et les différents exposants e_i . Un nombre minimum d'expériences est nécessaire pour identifier ces paramètres et est défini en fonction du nombre de grandeurs physiques étudiées. Avec " m " le nombre des grandeurs physiques, le nombre minimum d'expériences à réaliser est égal à 2^m (Goupy, 2006).

La constante et les différents exposants de l'équation II.11 sont déterminés par la méthode des moindres carrés. Celle-ci consiste à minimiser la somme carrée des écarts entre les valeurs expérimentales et les valeurs prédites par notre modèle mathématique.

Pour résoudre le problème des moindres carrés, plusieurs méthodes numériques peuvent être adoptées pour estimer les paramètres. Dans le cas où il s'agit d'un problème linéaire, la régression linéaire simple ou multiple est l'algorithme de calcul le plus utilisé. L'exercice se résout à l'aide du solveur d'Excel ou Matlab. Dans notre étude, une initialisation des valeurs avec la méthode de la régression multilinéaire est faite sur Matlab (détail en Annexe D). Les valeurs sont ensuite transférées sur le solveur d'Excel pour la résolution du problème et l'élaboration des corrélations finales.

5. Optimisation multicritère

Après avoir établi plusieurs corrélations évaluant les divers indicateurs de performance d'une structure complexe, une optimisation morphologique est effectuée dans l'objectif de trouver un nouvel objet ayant des performances intéressantes. Cette optimisation est basée sur les modèles mathématiques (corrélations) développés via l'analyse dimensionnelle. Dans notre étude, l'optimisation multicritère est adoptée puisqu'il y a plusieurs indicateurs de performance à optimiser.

L'optimisation multicritère joue un rôle indispensable dans la recherche. Elle permet de modéliser et résoudre des différents problèmes afin de déterminer des solutions efficaces en respectant des contraintes bien précises. Un problème d'optimisation consiste alors à définir une ou plusieurs fonctions objectifs qu'on vise à les maximiser ou minimiser en prenant compte des contraintes concernées. Les objectifs et les contraintes constituent deux concepts primordiaux dans chaque problème d'optimisation. Par définition, une fonction objectif est la fonction à optimiser qui précise le but à atteindre, tandis qu'une contrainte est une condition du problème qui doit être respectée lors de la résolution (Houam, 2013).

L'optimisation multicritère est une branche de l'optimisation considérant plusieurs fonctions objectifs contradictoires qui doivent être examinées simultanément. Le résultat de ce type d'optimisation ne conduit pas à une solution globale unique comme pour les problèmes mono-objectif ; c'est généralement un ensemble de solutions nommé le *front de Pareto*. Chaque solution attribue des priorités différentes aux objectifs du problème (Houam, 2013).

Dans cette partie, nous présentons les trois méthodes d'optimisation multi-objectif adoptée dans nos études.

Pour l'exploitation des résultats en chapitre III, un couplage des trois méthodes est réalisé. Les deux premières méthodes, epsilon contrainte et *goal programming*, sont dans un premier temps appliquées et sont vérifiées par la troisième méthode : I-MODE. Les résultats sont présentés sous forme d'un *front de Pareto* générés par I-MODE avec la solution numérique obtenue par epsilon contrainte et la deuxième solution obtenue par *goal programming*.

5.1 Epsilon contrainte

La méthode d'epsilon contrainte transforme un problème multicritère en un problème d'optimisation monocritère. Un des deux objectifs (ex. C_1) est sélectionné prioritaire pour l'optimisation, alors que l'autre (ex. C_2) est transformé en une contrainte d'inégalité (Chircop et Mangion, 2012). Cette approche permet de trouver des points de *Pareto* optimaux en minimisant la valeur du premier critère (C_1) et en bornant supérieurement la valeur du deuxième (C_2) (Sadi et al., 2014). Les deux bornes inférieures et supérieures du *front de Pareto* sont respectivement les points A et B. Leurs coordonnées sont obtenues selon la manière suivante :

- Point A : $\min C_1$; $\min C_2$ avec $C_{1,\min} - \Omega \leq C_1 \leq C_{1,\min} + \Omega$
- Point B : $\min C_2$; $\min C_1$ avec $C_2 = C_{2,\min}$

Le choix d' Ω pour le point A dépend de la valeur de $C_{1,\min}$. Par exemple, pour $C_{1,\min} < 1$, on prend un Ω de 10^{-2} .

Les coordonnées des autres points de *Pareto* sont obtenues en appliquant la méthode proposée par Sadi et al. (2014) :

- Point C : $\min C_1$ avec $C_{2,\min} \leq C_2 \leq C_{2,\min} + \Delta$, avec $\Delta = \frac{C_2(A) - C_2(B)}{\text{Nb de points visés}}$
- Point D : $\min C_1$ avec $C_{2,\min} + \Delta \leq C_2 \leq C_{2,\min} + 2\Delta$
- Le scénario continue jusqu'à arriver au Point A et avoir construire le *front de Pareto*

La Figure II.8 montre les coordonnées de chaque point A, B, C et D.

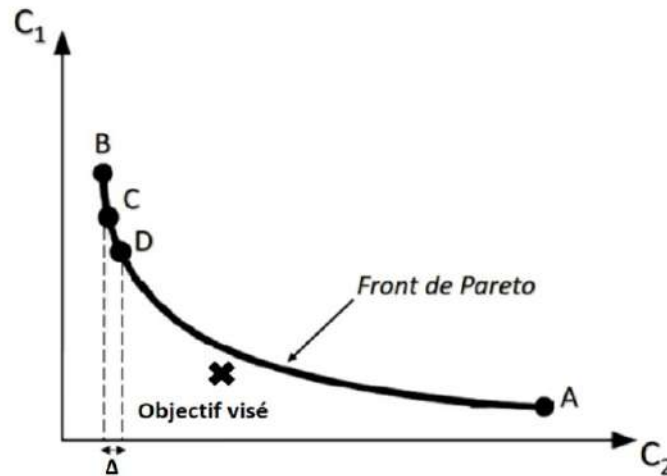


Figure II.8: Le Front de Pareto d'epsilon contrainte

Pour résoudre le problème d'optimisation par la méthode d'epsilon contrainte, il faut trouver parmi les solutions du *front de Pareto*, la solution optimale la plus proche de l'objectif visé. Cette solution est ensuite tracée sur le *front de Pareto* généré par I-MODE.

5.2 Goal programming

Le principe du *goal programming* est fondé sur l'extension de la programmation linéaire qui permet de modéliser plusieurs fonctions objectifs contradictoires. C'est une méthode simple qui consiste à fixer un but optimal (C_i^*) à atteindre pour toute fonction objectif (C_i). Les résultats fournis par cette approche sont des solutions optimums obtenues par minimisation des déviations par rapport aux buts fixés tout en respectant les contraintes mises. La fonction f_{gp} va servir alors à minimiser la somme des écarts entre les différents buts à atteindre et leurs résultats (Houam, 2013) :

$$f_{gp} = \min \sum_{i=1}^n \left(\frac{C_i - C_i^*}{C_i^*} \right)^2 \quad (II.12)$$

La solution obtenue par goal programming est représentée sur le *front de Pareto* de la méthode I-MODE.

5.3 I-MODE

Integrated Multi-Objective Differential Evolution ou I-MODE est une troisième méthode pour résoudre des problèmes d'optimisation multicritère. Elle permet de générer un ensemble de solutions (*front de Pareto*) respectant les objectifs visés et les contraintes mises. Ce programme est à la disposition des chercheurs sous format Excel. Le programme I-MODE comprend quatre parties principales (Sharma *et al.*, 2017) :

1. Algorithme à évolution différentielle

Une population initiale est générée aléatoirement (taille de la population initiale = $N = 100$) pour effectuer ensuite une sélection de 50% et remplir la liste tabou (taille de la liste tabou = $TL = 50$). Une nouvelle population G_p (ayant $i =$ nombre de solutions = 100) est générée à partir de la population initiale en appuyant sur deux paramètres : Cr et F . Cr est choisie d'une façon aléatoire en basant sur la loi normale. Elle correspond à la probabilité avec laquelle le programme calcule les variables de la nouvelle solution. Dans ce cas, l'algorithme calcule F aléatoirement en basant sur la loi de Cauchy. Une nouvelle solution u_i est alors obtenue en fonction de F . Dans le cas contraire, I-MODE utilise la valeur de la solution déjà obtenue par la population initiale.

2. Algorithme de recherche avec tabou

Le programme garde un enregistrement des points récemment visités dans l'espace de la solution. Si la solution u_i nouvellement générée est proche d'un point déjà existant dans la liste tabou (pour une distance TR précisée dans le code), elle sera éliminée. Pour toute autre solution acceptée, les valeurs des objectifs et des contraintes sont calculées. La procédure continue jusqu'à avoir $i = 100$ solutions appartenant à la nouvelle population G_p .

3. Algorithme auto-adaptatif

Le programme combine les deux populations (l'initiale et la nouvelle) et trouve les 100 meilleures solutions. Ces cent constituent la population ($G_p + 1$). Par exemple, pour $G_p = 2$, le programme génère 100 candidats pour les comparer ensuite avec les solutions de $G_p = 1$ et choisir les 100 meilleures solutions. En générant les bonnes solutions, le programme mémorise les différentes valeurs de Cr et F . Ainsi, il s'adapte et met à jour les distributions de la loi normale et de la loi de Cauchy en créant les prochaines populations.

4. Algorithme de fin de recherche

Les nouvelles populations sont générées de la même manière que la population ($G_p + 1$). I-MODE s'arrête quand le nombre des populations créées dépasse le critère de fin de recherche : MNG (*maximum number of generation*).

La méthode de calcul adoptée par le programme I-MODE est illustré en Figure II.9.

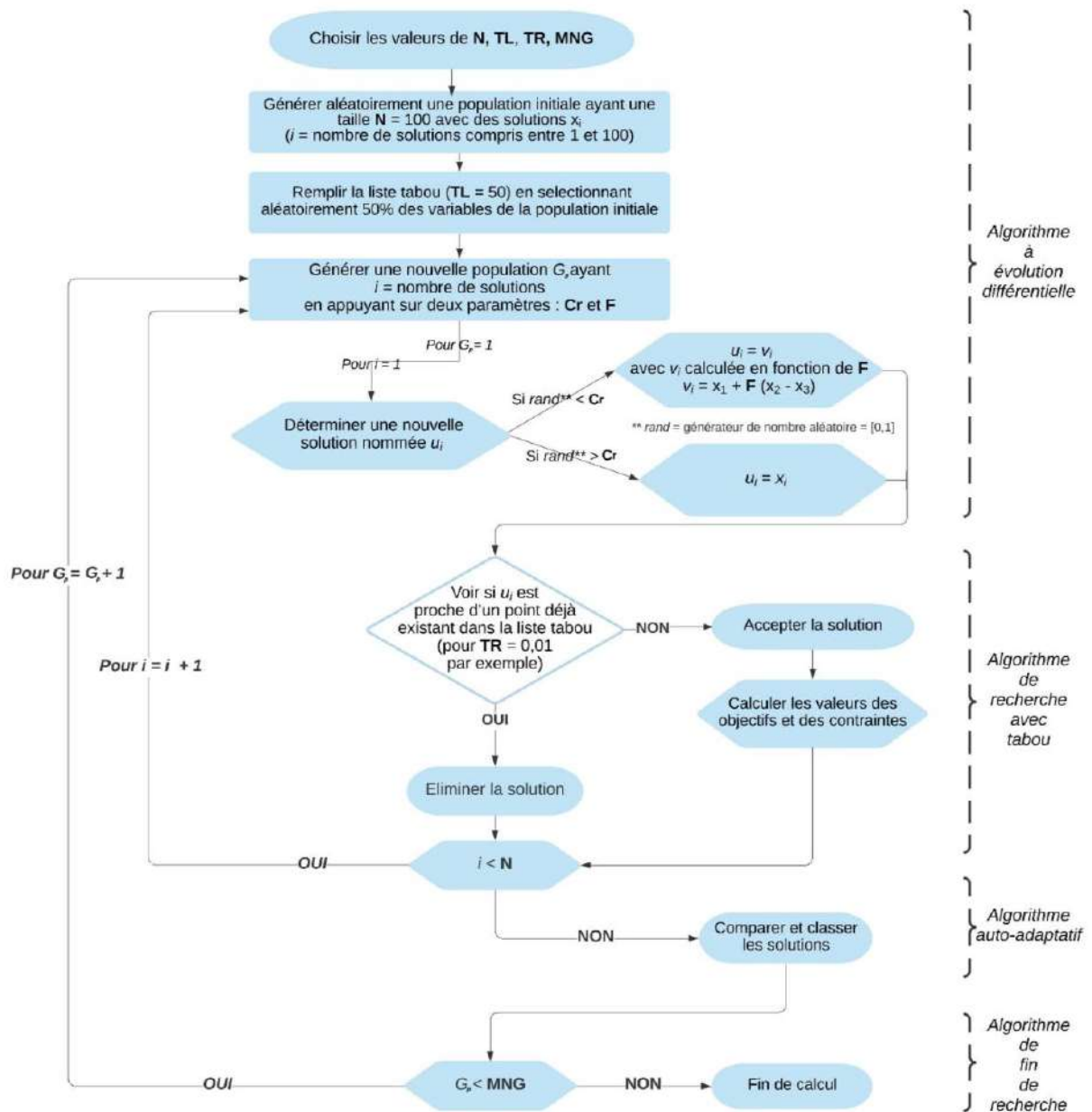


Figure II.9: Méthode de calcul de I-MODE

6. Conclusion

La méthodologie du travail appliquée pour l'optimisation morphologique des solides structurés complexes a été présentée. Dans le cadre de cette thèse, elle sera appliquée à notre premier cas de référence : les internes Tetrasplines (TS) à base de fils de section cylindrique.

La première étape de cette méthodologie, la conception des structures, a été tout d'abord exposée. Dans cette étape, les propriétés d'usage vis-à-vis du procédé chimique sont définies afin de choisir l'objet fonctionnel en se basant sur des structures existantes ou en créant une nouvelle structure. L'objet choisi est imprimé en 3D par les méthodes de fabrication additive.

Ensuite, les approches adoptées pour la caractérisation morphologique des structures imprimées ont été présentées. Les dispositifs expérimentaux des études hydrodynamiques et de transfert de matière réalisées sur les Tetrasplines ont été décrits. Il existe un pilote expérimental dans le laboratoire pour la caractérisation de perte de charge, où le liquide s'écoule par gravité avec un flux d'air à contre-courant. Pour l'efficacité en transfert de matière, la mesure de la HEPT s'effectue à travers la distillation (système cyclohexane/n-heptane) dans une colonne à reflux total.

Enfin, la méthode utilisée pour la modélisation des performances (analyse dimensionnelle) ainsi que les méthodes d'optimisation morphologique ont été détaillées.

Chapitre III : Performances des garnissages filaires en distillation

Ce chapitre est dédié au garnissage Tetraspline TS à base de fil de section cylindrique fabriqué en 3D. Les performances hydrodynamiques de ce garnissage (perte de charge et vitesse à l'engorgement) et l'efficacité en transfert de matière (HEPT) seront présentées. Les performances et les caractéristiques seront ensuite modélisées à travers des corrélations développées à l'aide d'une analyse dimensionnelle. Enfin, une optimisation morphologique des structures va permettre d'aboutir à un garnissage TS performant en terme de capacité et d'efficacité.

1. Etude du garnissage Tetraspline

1.1 Géométrie des internes

Le garnissage développé est basé sur une géométrie dite Tetraspline (TS) à base de fils de section cylindrique (Figure III.1). Ce choix de géométrie est basé sur le concept des fractales, ici une succession d'arêtes de tétraèdre régulières (l_1) et (l_2), afin d'obtenir un garnissage filaire garantissant le contact gaz liquide. L'idée innovante du fil est que l'écoulement de liquide sur un fil aura une surface interfaciale supérieure à la surface géométrique proposée par la structure de garnissage. En revanche, pour un garnissage à base de plaques parfaitement mouillé, la surface interfaciale liquide sera plus ou moins égale à la surface géométrique.

Suite à une étude locale des écoulements du film liquide sur un élément du garnissage (Dejean et al., 2020), il a été observé que la répartition du liquide est améliorée par l'ajout d'un arrondi à l'intersection des fils, réalisé à l'aide d'une fonction spline (Figure III.1.a).

Différentes structures TS sont conçues en changeant deux paramètres géométriques (Figure III.1.a), le diamètre du fil (d_w) et les longueurs des fils avec $l_1 = l_2 = l_{fil}$ (Kawas et al., 2021a) (Kawas et al., 2021b). Les deux angles des arêtes avec la verticale (Θ_1, Θ_2) ont des valeurs constantes pour tous les garnissages développés avec $\Theta_1 = 30^\circ$ et $\Theta_2 = 40^\circ$. Le choix des angles est basé sur une étude faite par Dejean et al. (2020), qui a observé l'influence de l'angle du fil sur l'écoulement du film liquide.

Les internes sont aussi caractérisés géométriquement par un nombre de fil par section de garnissage, noté n_{fil} ($\#/m^2$), une surface spécifique, noté $S_{géo}$ (m^2/m^3), et un taux de vide (ou porosité), noté ε . La variation de d_w et l_{fil} aboutit à des valeurs différentes de n_{fil} , $S_{géo}$, et ε et spécifique pour chaque configuration.

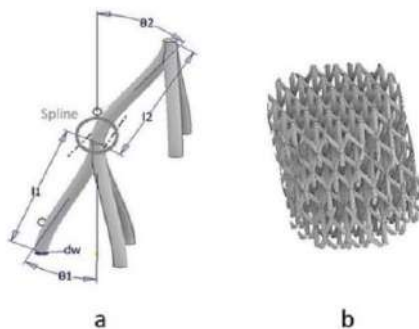


Figure III.1: (a) : Représentation géométrique d'un élément du garnissage, (b) : Garnissage TS

Les performances des TS sont caractérisées par :

- (i) la perte de charge linéique, notée $\Delta P/\Delta Z$ (Pa/m), qui caractérise l'objet en termes d'hydrodynamique
- (i) la vitesse à l'engorgement, notée U_F en m/s, qui caractérise la capacité hydrodynamique
- (ii) la hauteur équivalente à un plateau théorique, notée HEPT (m), qui caractérise l'objet en termes de transfert de matière (efficacité de séparation).

Les méthodes adoptées pour déterminer ces dernières caractéristiques ont été présentées dans le chapitre II (3.2). La modification du diamètre et de la longueur du fil a pour but d'étudier l'effet des caractéristiques géométriques sur les performances hydrodynamiques (i) et de transfert de matière (ii) des garnissages.

1.2 Fabrication des internes

Modélisation morphologique :

Tous les garnissages TS (15 internes au total) sont dessinés en trois dimensions à l'aide d'un logiciel de CAO (Autodesk Inventor) et ensuite imprimés par FA (impression 3D. Autodesk Inventor est un logiciel de modélisation de forme permettant de générer numériquement les structures tridimensionnelles des garnissages TS.

Impression 3D :

13 structures sont réalisées en polyamide (PA12) et 2 en acier inoxydable (Inox316L) via deux procédés de fabrication additive, respectivement frittage sélectif par laser (SLS) et fusion sélective par laser (SLM). Les garnissages imprimés en PA12 (Figure III.2.a) permettent de diminuer les coûts de fabrication par prototype. Les garnissages les plus performants sont imprimés en Inox316L (Figure III.2.b). Il est important de noter que les deux matériaux choisis (PA12 et Inox316L) ont des mouillabilités proches.

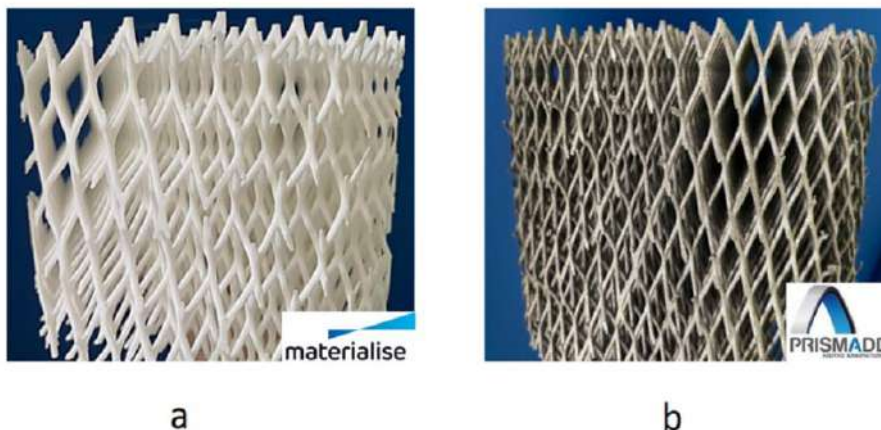


Figure III.2: Photo d'un garnissage TS imprimé en (a) : polyamide par Materialise, (b) : acier inoxydable par Prismadd

Caractérisation morphologique :

Des mesures vont permettre de consolider les grandeurs géométriques ($S_{géo}, \varepsilon$) et ainsi aboutir à des corrélations plus précises.

Le logiciel de dessin 3D permet de calculer numériquement le taux de vide et la surface spécifique. Comme vu dans le chapitre II (3.1), les diamètres des fils mesurés après impression (avec un pied à coulisse digital) sont différents des diamètres théoriques dessinés dans les fichiers numériques. Cette différence dépend de l'exactitude et de la précision de la méthode d'impression utilisée et des phénomènes de rétractation des matériaux.

A partir de ces nouvelles valeurs du diamètre de fils (chapitre II, 3.1), la surface spécifique est recalculée selon deux méthodes. La première méthode est le calcul par Autodesk Inventor. Le logiciel calcule la surface spécifique à partir d'une aire. Cette aire est issue d'une discrétisation (maillage) de la surface en éléments fins. Le logiciel de CAO raffine automatiquement le maillage de façon à avoir une aire indépendante de cette discrétisation.

Une deuxième méthode est aussi utilisée pour calculer la surface $S_{géo}$, puisque nos garnissages filaires peuvent être vus comme un grand nombre de fils, donc un groupe de cylindres. En négligeant les intersections des TS, les caractéristiques de chaque garnissage (le taux de vide et la surface spécifique) peuvent être calculées en fonction des paramètres géométriques qui sont (voir Figure III.1.a) :

- les deux angles de base (Θ_1, Θ_2),
- le diamètre des fils
- et la longueur des fils.

Les détails sont affichés en Annexe E.

Dans ce cas, et si les intersections sont négligées, une relation entre la surface spécifique $S_{géo}$, le taux de vide ε et le diamètre réel du fil d_{fil} peut être définie (Eq. III.1) (Kawas et al., 2021a).

$$S_{géo} = \frac{4(1 - \varepsilon)}{d_{fil}} \quad (III.1)$$

La relation a été testée et vérifiée précédemment sur différentes géométries de TS. Cependant, les valeurs de la surface $S_{géo}$ sont déterminées avec plus de précision à l'aide du logiciel de CAO (Autodesk Inventor). Les valeurs obtenues par l'équation III.1 sont comparées aux valeurs théoriques obtenues par le logiciel ; l'erreur maximale calculée est égale à 12,14%. Cette erreur est due au fait que l'équation III.1 n'est valide que si les intersections sont négligées et pour un dessin avec des arêtes droites (pas de fonction spline sur l'intersection de fils).


Pour le taux de vide ε , il est aussi recalculé par Autodesk Inventor avec le diamètre réel et est également évalué par une mesure expérimentale (voir Chapitre II, 3.1). Le taux de vide final est la moyenne de la valeur obtenue par le logiciel et celle obtenue par mesure expérimentale, puisque les valeurs évaluées par mesure expérimentale sont proches des valeurs déterminées par Autodesk Inventor.

1.3 Les caractéristiques géométriques

Les données caractéristiques réelles (mesurées et calculées) des 15 TS sont affichées dans Tableau III.1. La nomenclature associée aux différents garnissages est la suivante : TS_X_d_w_ε_S_{géo}, où X correspond au matériau du garnissage, d_w le diamètre de fil (théorique), ε le taux de vide en % et S_{géo} la surface géométrique en m²/m³.

Le Tableau III.1 montre que les 15 configurations sont choisies de la manière suivante : certaines configurations présentent la même surface spécifique (entre 205 et 207 m²/m³), le TS_PA_1,5_92_205 et le TS_PA_1_95_205 par exemple. D'autres configurations présentent des taux de vide identiques (0,89 ou 0,91), comme le TS_PA_1,5_89_281, le TS_PA_2,5_89_164. Certaines configurations sont aussi caractérisées par un diamètre ou une longueur de fil identique ; les garnissages TS_PA_1,5_90_238 et TS_PA_1,5_91_225 ont le même diamètre d_w = 1,5 mm et les garnissages TS_PA_1,25_93_207 et TS_PA_1,5_90_238 ont la même longueur l_{fil} = 11 mm. Finalement, deux configurations identiques sont imprimées en polyamide et en acier inoxydable. Ce sont les garnissages TS_X_1,5_92_205 et TS_X_2,25_89_182 (X correspond à PA ou In). Les garnissages imprimés en acier inoxydable permettent d'étudier l'incidence du matériau sur les performances (Kawas et al., 2021a).

Tableau III.1: Les paramètres géométriques des garnissages TS (Kawas et al., 2021b)

	Garnissage TS	d _{fil} (mm) (valeur réelle - mesurée)	l _{fil} (mm) (valeur théorique)	n _{fil} (# /m ²) (valeur calculée)	ε (valeur réelle)	S _{géo} (m ² /m ³) (valeur réelle) 
Surface spécifique identique (environ 205 m ² /m ³ , théoriquement)	TS_PA_1,5_92_205	1,29	12	49 733	0,935	182,55
	TS_PA_1_95_205	0,65	10	81 367	0,973	142,76
	TS_PA_1,25_93_207	0,88	11	64 122	0,961	154,95
Taux de vide identique ε (0.91, théoriquement)	TS_PA_1,5_91_225	1,27	11,5	54 469	0,931	197,17
	TS_PA_1,75_91_196	1,5	13,25	40 744	0,928	172,69
	TS_PA_2,25_91_150	2,05	17,25	23 329	0,923	139,74
	TS_PA_2_91_169	1,7	15,5	31 280	0,929	148,38
Taux de vide identique ε (0.89, théoriquement)	TS_PA_1,5_89_281	1,3	10	70 066	0,907	252,42
	TS_PA_2,5_89_164	2,37	17,2	22 441	0,901	157,42
	TS_PA_2,25_89_182	2,15	15,35	28 646	0,896	175,50
	TS_PA_2,75_89_148	2,64	19	18 817	0,897	143,72
Diamètre de fil identique d _w (1.5mm, théoriquement)	TS_PA_1,5_90_238	1,19	11	61 140	0,932	198,93
	TS_PA_1,5_95_139	1,31	15	32 645	0,956	124,07
Garnissage en Inox316L	TS_In_1,5_92_205	1,41	12	45 471	0,929	195,94
	TS_In_2,25_89_182	2,14	15,35	28 080	0,899	174,89

2. Résultats

2.1 Résultats expérimentaux

2.1.1 Pertes de charge et vitesse à l'engorgement

Dans ce paragraphe, les pertes de charge et les vitesses à l'engorgement des différents garnissages présentant la même surface spécifique théorique et le même taux de vide théorique sont comparés. Les résultats de l'évolution de la perte de charge à sec et en écoulement gaz liquide à contre-courant en fonction du facteur F ainsi que les vitesses d'engorgement sont illustrés en Figure III.3 et III.4 pour un débit liquide de $26 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ et un système eau/air. Pour certains garnissages, les résultats sont extrapolés afin de pouvoir déterminer le point d'engorgement. Ces derniers sont aussi présentés sous forme d'un facteur F à l'engorgement F_F (en $\text{Pa}^{0.5}$) en Tableau III.2 (système eau/air pour un débit liquide de $26 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$).

Pour une même surface $S_{\text{géo}}$ l'augmentation du taux de vide entraîne une diminution de la perte de charge (Kawas et al., 2021a). Une diminution de la longueur des fils l_{fil} avec une conservation de la surface spécifique induit aussi à l'augmentation du taux de vide, et donc des pertes de charge plus faibles et des vitesses d'engorgement plus élevées. Par exemple, le TS_PA_1_95_205 (avec une longueur $l_{\text{fil}} = 10 \text{ mm}$ et un taux de vide $\varepsilon = 0,973$) présente une perte de charge de $0,75 \text{ mbar/m}$ (pour $F = 2 \text{ Pa}^{0.5}$), 2 fois plus petite que la perte de charge de l'interne TS_PA_1,5_92_205 (avec une longueur $l_{\text{fil}} = 12 \text{ mm}$ et un taux de vide $\varepsilon = 0,935$) (Figure III.4.a). L'engorgement est plus rapide avec le dernier TS sous un facteur F_F de $2,96 \text{ Pa}^{0.5}$ (Tableau III.2).

Pour un même taux de vide ε , le diamètre et la longueur des fils sont inversement proportionnel à la perte de charge (Kawas et al., 2021a). Une diminution de ces deux paramètres géométriques avec conservation du taux de vide ε entraîne une augmentation des pertes de charge et un engorgement rapide. De plus, en diminuant le diamètre et la longueur des fils, la surface spécifique augmente sans affecter le taux de vide. Par exemple, le TS_PA_1,5_89_281 (avec un diamètre $d_{\text{fil}} = 1,3 \text{ mm}$ et une longueur $l_{\text{fil}} = 10 \text{ mm}$) a une vitesse d'engorgement inférieure à celle du TS_PA_2,75_89_148 (avec un diamètre $d_{\text{fil}} = 2,64 \text{ mm}$ et une longueur $l_{\text{fil}} = 19 \text{ mm}$) (Figure III.4.b et Tableau III.2). D'un autre côté, le TS_PA_1,5_91_225 présente une perte de charge supérieure à la perte de charge du TS_PA_2,25_91_150 pour $F = 2 \text{ Pa}^{0.5}$ et un débit liquide de $26 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ ($1,69$ et $1,2 \text{ mbar/m}$, respectivement) (Figure III.4.c). La colonne engorge alors plus rapidement avec la première structure (diamètre $d_{\text{fil}} = 1,27 \text{ mm}$, longueur $l_{\text{fil}} = 11,5 \text{ mm}$) (Tableau III.2).

Le même comportement est observé pour les essais effectués avec les garnissages à sec (Figure III.3) et pour les essais réalisés avec d'autres débits liquides ainsi que pour les systèmes eau/glycérol/air et cyclohexane/n-heptane.

Chapitre III : Performances des garnissages filaires en distillation

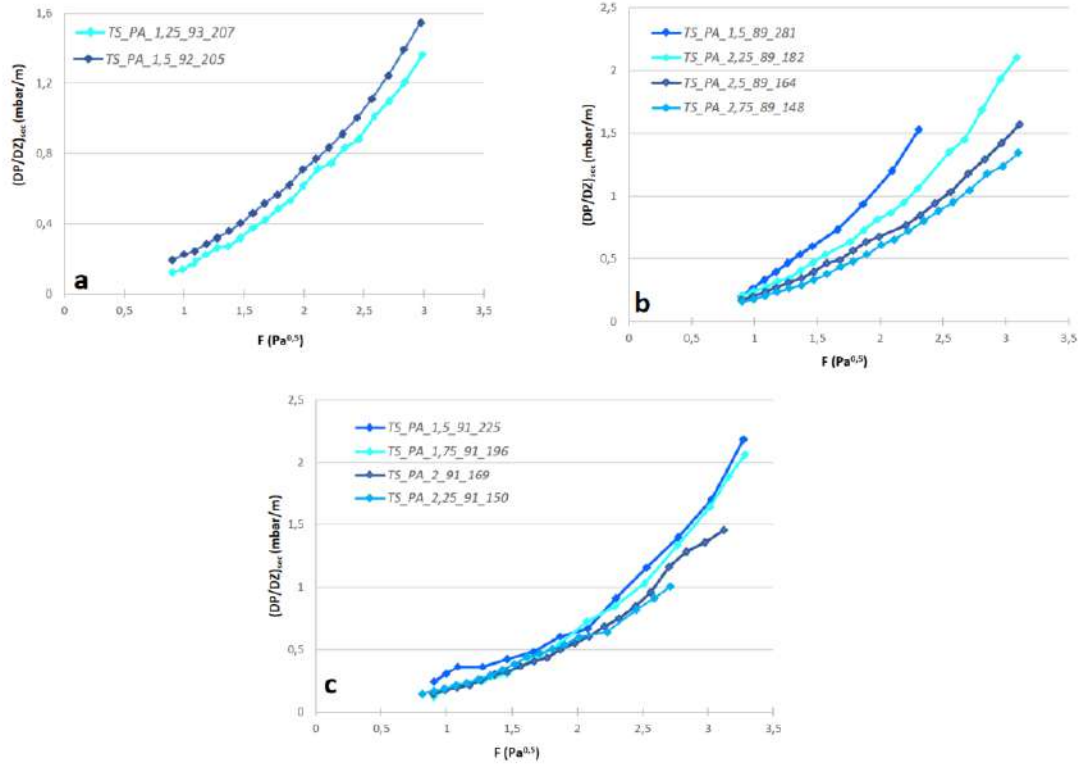


Figure III.3: Comparaison de la perte de charge à sec des différents garnissages pour : (a) et (b) : un même taux de vide théorique (0,89 et 0,91)

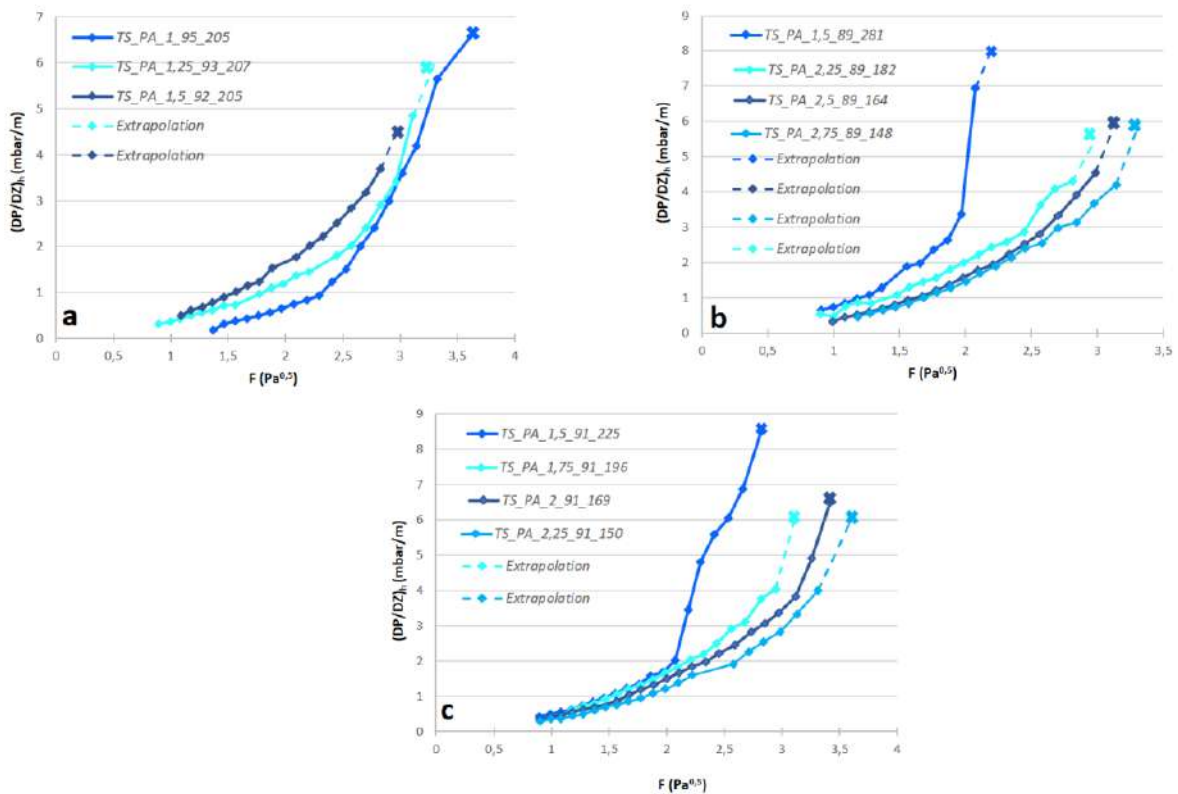


Figure III.4: Comparaison de la perte de charge (en écoulement gaz liquide – un débit liquide de $26 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ et un système eau/air) des différents garnissages pour : (a) : une même surface spécifique théorique, (b) et (c) : un même taux de vide théorique (0,89 et 0,91)

Tableau III.2: Les points d'engorgement des différents garnissages présentant la même surface spécifique théorique et le même taux de vide théorique (pour un débit liquide de $26 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ et un système eau/air)

	Garnissage TS	F_f ($\text{Pa}^{0.5}$)	Valeur mesurée ou estimée
Surface spécifique identique (environ $205 \text{ m}^2/\text{m}^3$, théoriquement)	TS_PA_1,5_92_205	2,96	Estimée
	TS_PA_1_95_205	3,62	Mesurée
	TS_PA_1,25_93_207	3,3	Estimée
Taux de vide identique ε (0.91, théoriquement)	TS_PA_1,5_91_225	2,87	Mesurée
	TS_PA_1,75_91_196	3,11	Estimée
	TS_PA_2,25_91_150	3,6	Estimée
	TS_PA_2_91_169	3,42	Mesurée
Taux de vide identique ε (0.89, théoriquement)	TS_PA_1,5_89_281	2,19	Estimée
	TS_PA_2,5_89_164	3,14	Estimée
	TS_PA_2,25_89_182	2,99	Estimée
	TS_PA_2,75_89_148	3,32	Estimée

Les valeurs expérimentales de la perte de charge et des vitesses à l'engorgement des différents garnissages (voir les annexes électroniques) sont utilisées afin de développer des corrélations pour prédire les performances hydrodynamiques. Les valeurs de la perte de charge à sec sont aussi considérées comme indicateurs de pré-screening pour sélectionner les garnissages performants en terme de capacité.

2.1.2 Capacité en transfert de matière

Dans ce paragraphe, les résultats de transfert de matière des différents garnissages présentant la même surface spécifique théorique et le même taux de vide théorique sont illustrés en fonction de d_w (diamètre théorique). Pour ces résultats, la valeur choisie est la valeur de la zone où la HEPT représente un plateau constant (chapitre II, 3.2.2.3).

L'augmentation du diamètre d_w provoque une augmentation de l'efficacité de séparation (diminution de la HEPT) pour une même surface $S_{géo}$ (Kawas et al., 2021a) (Figure III.5.a). Avec un diamètre plus grand, l'écoulement et la distribution du liquide sur les fils est améliorées, ce qui entraîne une amélioration des performances de transfert de matière. Cependant, pour un même taux de vide, l'influence n'est pas monotone (Figure III.5.b et Figure III.5.c). D'un côté, l'augmentation du diamètre d_w améliore le transfert de matière et la mouillabilité et donc augmente l'air interfaciale. De l'autre côté, la diminution de la surface $S_{géo}$ (plus gros fil) pour une même mouillabilité diminue l'air interfaciale et alors limite le transfert de matière (augmente la HEPT).

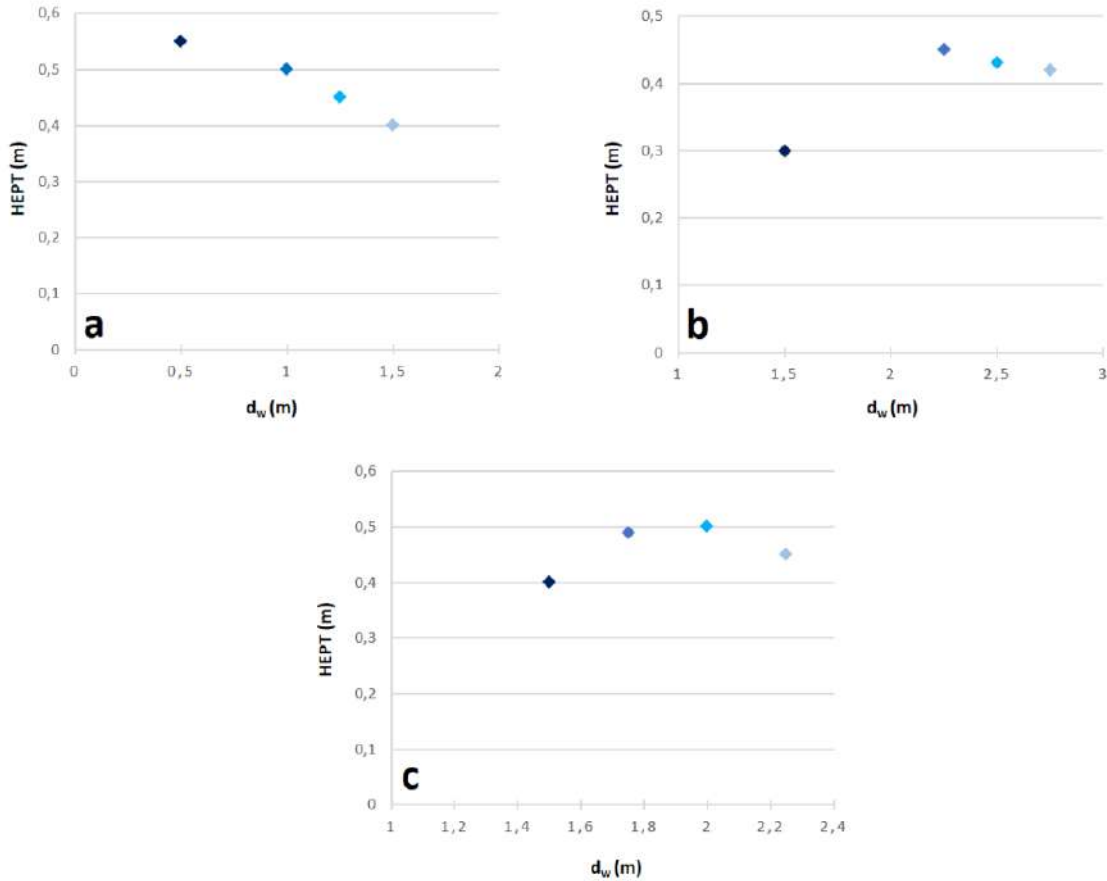


Figure III.5: Comparaison de la HEPT des différents garnissages (pour un système cyclohexane/n-heptane) pour : (a) : une même surface spécifique théorique, (b) et (c) : un même taux de vide théorique (0,89 et 0,91)

2.2 Corrélations

Cette partie présente les corrélations développées pour déterminer la perte de charge du garnissage à sec et mouillé, la vitesse à l'engorgement, et la HEPT.

2.2.1 Perte de charge à sec

Afin d'établir une corrélation définissant la perte de charge à sec, des essais hydrodynamiques avec un système monophasique air ont été réalisés avec nos 15 garnissages. Les pertes de charges à sec mesurées expérimentalement sont obtenues en fonction de la vitesse de l'air, donc en fonction du facteur F. La corrélation est basée sur la méthode de l'analyse dimensionnelle avec 254 points expérimentaux. Les détails de cette analyse sont présentés en Annexe F.

L'équation III.2 montre la corrélation (sous forme adimensionnelle) permettant de prédire la perte de charge à sec à travers le nombre de Hagen (Hg_{sec}) (Kawas et al., 2021b).

$$Hg_{sec} = 0,06 Re_g^2 \left(\frac{d_{hg}}{l_{fil}} \right)^2 \varepsilon^{-10} \quad (III.2)$$

$$\text{avec } Hg_{\text{sec}} = \frac{\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{\text{sec}} \rho_{\text{gaz}} d_{\text{hg}}^3}{\mu_{\text{gaz}}^2} \quad (\text{III.3})$$

avec Re_g le nombre de Reynolds gaz, μ_{gaz} la viscosité dynamique du gaz en Pa.s , ρ_{gaz} la masse volumique du gaz en kg/m^3 , l_{fil} la longueur du fil en m, d_{hg} le diamètre hydraulique gazeux en m et ε le taux de vide. $\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{\text{sec}}$ est la perte de charge de nos TS exprimé en Pa/m pour une gamme de nombre de Reynolds du gaz allant de 500 à 5440 et un facteur F compris entre 0,89 et 3,15 $\text{Pa}^{0,5}$.

La constante et les différents exposants de l'équation III.2 sont déterminés par la méthode des moindres carrés (voir chapitre II, 4.2). Noter que l'exposant 2 de Re_g (de l'équation III.2) apparaît aussi dans la relation d'Ergun (1952) caractérisant la perte de charge à sec dans un milieu poreux. En effet, l'évolution de la perte de charge du gaz sur un garnissage sec est traduite par un terme proportionnel au carré de la vitesse du gaz. D'un autre côté, le terme ε^{10} n'influence pas significativement sur l'équation. Lorsque le taux de vide ε est compris entre 0,9 et 0,97 (la gamme de nos TS), le terme ε^{10} sera respectivement entre 0,35 et 0,74.

Le nombre de Reynolds du gaz dans l'équation III.2 prend en compte le diamètre hydraulique gazeux et la vitesse moyenne du gaz, noté \bar{U}_{gaz} . Cette dernière est calculée en divisant la vitesse du gaz en fût vide par le degré de vide caractérisant le garnissage : $\bar{U}_{\text{gaz}} = \frac{U_{\text{gaz}}}{\varepsilon}$ (Mackowiak, 2010).

L'expression du Re_g sera alors définie sous la forme de (Kawas et al., 2021b):

$$Re_g = \frac{U_{\text{gaz}} \rho_{\text{gaz}} d_{\text{hg}}}{\varepsilon \mu_{\text{gaz}}} \quad (\text{III.4})$$

L'expression explicite du diamètre hydraulique du nombre de Reynolds gaz, noté d_{hg} (m) était déjà proposé par Dietrich et al. (2009). Ce dernier propose une formule du diamètre hydraulique pour des mousses de céramiques en considérant que la différence entre la porosité totale et la porosité hydrodynamique est négligeable. Le taux de vide ε dans l'équation du diamètre hydraulique d_{hg} sera alors la porosité totale nommée taux de vide et déterminé par le rapport entre le volume des pores et le volume total.

Par définition, le rayon hydraulique, noté r_h (m), est calculé par le ratio de l'aire de la section du passage du fluide par le périmètre mouillé (Eq. III.5). Le diamètre hydraulique sera égal à 4 fois ce rayon.

$$d_{\text{hg}} = 4 \frac{\text{Aire de la section du passage du fluide}}{\text{Périmètre mouillé}} \frac{L}{L} = 4 \frac{\text{Volume du fluide}}{\text{Surface}} \frac{V}{V} \quad (\text{III.5})$$

$$d_{\text{hg}} = 4 \frac{\varepsilon}{S_{\text{géo}}} \quad (\text{III.6})$$

avec : - L = Longueur (en m) et V = Volume total (m³)

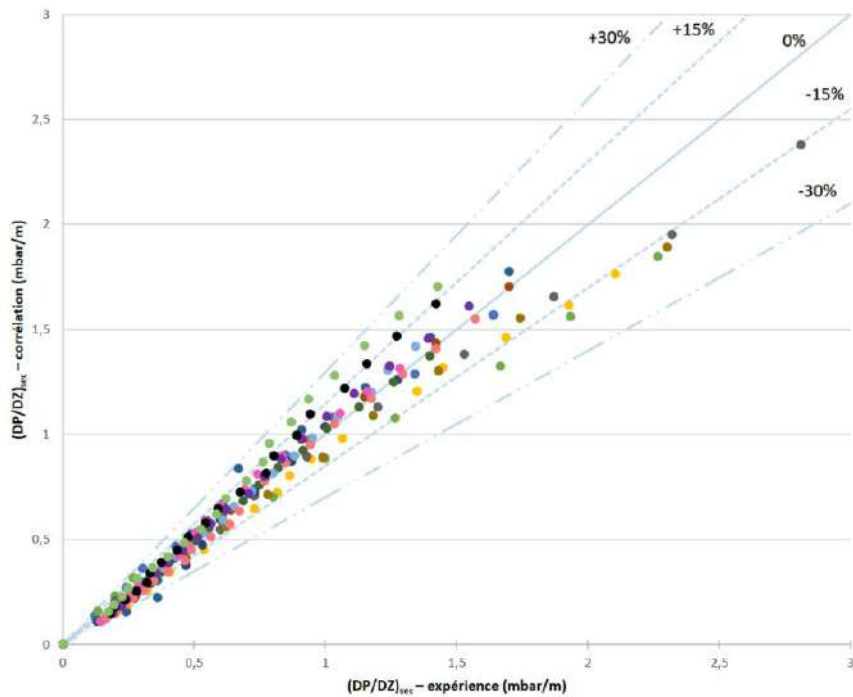
- Le taux de vide : $\varepsilon = \frac{\text{Volume du passage du fluide}}{V} = \frac{\text{Volume des pores}}{V}$
- La surface spécifique en m²/m³ : $S_{\text{géo}} = \frac{\text{Surface}}{V}$

Afin de faire apparaître que les grandeurs morphologiques des TS (Θ_1 , Θ_2 , d_{fil} , l_{fil}), la relation de la surface spécifique de la partie 1.2 est utilisée (Eq. III.1). L'expression finale du diamètre hydraulique d_{hg} pour nos garnissage sera alors (Kawas et al., 2021b) :

$$d_{\text{hg}} = \frac{\varepsilon}{(1 - \varepsilon)} d_{\text{fil}} \quad (\text{III.7})$$

Les valeurs de ces diamètres hydraulique du nombre de Reynolds gaz sont données pour chaque garnissage en Annexe G.

La Figure III.6 représente les valeurs des pertes de charge à sec calculées par la corrélation (Eq. III.2) en fonction des valeurs expérimentales. Les droites $\pm 15\%$ et $\pm 30\%$ de $(\Delta P/\Delta Z)_{\text{sec},0\%}$ sont tracées pour visualiser la précision de notre corrélation.



**Figure III.6: Courbe de parité de la corrélation évaluant la perte de charge à sec
Les cercles colorés permettent d'identifier les différentes configurations TS**

La figure indique que les valeurs de $(\Delta P/\Delta Z)_{\text{sec}}$ déterminées expérimentalement sont en bonne concordance avec les valeurs obtenues par l'équation III.2. Parmi 254 points expérimentaux, 17% des points sont hors des $\pm 15\%$, tandis que 0,78% des points sont hors $\pm 30\%$. Une partie des points avec un fort écart correspondant à des structures avec des diamètres de fil très petits (par exemple TS_PA_1_25_93_207, un diamètre $d_{\text{fil}} = 0,88$ mm et TS_PA_1_95_205, un diamètre $d_{\text{fil}} = 0,65$ mm) (Kawas et al., 2021b). Une étude récente (Kawas et al., 2021a) a montré qu'il est nécessaire de concevoir des internes avec un diamètre

de fil minimal afin de favoriser l'écoulement du film liquide sur les fils. Un diamètre de fil très petit entraîne une augmentation de la HEPT (limite le transfert de matière) et une augmentation de la perte de charge (avec un engorgement rapide). Une autre partie des points avec un fort écart est observée au début des expériences avec des facteurs F inférieurs à $1,08 \text{ Pa}^{0.5}$. En général, ces faibles facteurs F ne reflètent pas les débits industriels (Kawas et al., 2021b).

En supprimant les valeurs de la perte de charge des configurations avec un petit d_{fil} , ainsi que les valeurs de la perte de charge des quinze structures TS avec $F \leq 1,08 \text{ Pa}^{0.5}$, il reste 175 points expérimentaux. 9,7% de ces points présentent un écart de plus de $\pm 15\%$ et aucun point est hors $\pm 30\%$. A savoir aussi qu'en utilisant les surfaces spécifiques issues du calcul d'Autodesk Inventor ; les écarts entre les valeurs mesurées et calculées peuvent être réduits. Parmi les 254 points expérimentaux, 14% des points vont présenter des écarts de $\pm 15\%$.

La corrélation de la perte de charge à sec des TS (Eq. III.2) est comparée à deux corrélations proposées dans la littérature (Tableau III.3) (Kawas et al., 2021b). Pour cette comparaison, quatre configurations différentes sont sélectionnées ; elles couvrent l'ensemble des structures imprimées pour une gamme de diamètre d_{fil} allant de 1,5 m à 2,75 m.

Les résultats de comparaison sont illustrés en Figure III.7. Les deux corrélations montrent une sous-estimation des valeurs expérimentales. Les mousses céramiques utilisées dans les travaux de Lévêque et al. (2009) et Inayat et al. (2016) ne sont pas considérés comme étant des structures de type lattice. Néanmoins, d'un point de vue géométrique, ils sont les plus proches de nos internes TS. Les corrélations qui évaluent la perte de charge à sec des mousses fonctionnent mal à cause de la différence entre les structures ; les mousses présentent en général des surfaces spécifiques bien supérieures aux surfaces des TS pour des taux de vide qui sont inférieurs à 0,9.

Pour la corrélation de Lévêque et al. (2009), le diamètre de particule d_p est calculé à l'aide de l'approche de Lacroix et al. (2007) (Tableau III.3) avec $d_s = l_{\text{fil}}$.

Pour la corrélation d'Inayat et al. (2016), le diamètre hydraulique d_{hg} est égal à 4 fois le ratio de la surface $S_{\text{géo}}$ par le taux du vide ε . Une relation pour calculer la surface $S_{\text{géo}}$ est aussi proposée par ces auteurs (Tableau III.3). En appliquant cette formule sur nos garnissages TS, les valeurs théoriques de la surface spécifique des TS sont supérieures aux valeurs prédites. Par exemple, le TS_PA_1,75_91_196 a une surface théorique de $172,69 \text{ m}^2/\text{m}^3$, 5 fois plus grande que la valeur prédite ($36,07 \text{ m}^2/\text{m}^3$). Un nouveau paramètre géométrique (δ_{cellule}) est présent dans la corrélation de la surface $S_{\text{géo}}$. δ_{cellule} est utilisé pour définir la taille des pores dans les mousses à cellules ouvertes (voir Chapitre I). Puisque ce diamètre δ_{cellule} ne prend pas en compte les caractéristiques de nos garnissages, il peut être calculé à partir de la

longueur des fils des TS avec $\delta_{\text{cellule}} = 2l_{\text{fil}}\sqrt{\sqrt{3}/4\pi}$.

Comme montre la Figure III.7, les résultats obtenus à partir du modèle d'Inayat et al. (2016) sont cohérents avec les résultats de Lévêque et al. (2009), puisque les deux corrélations sont basées sur la relation d'Ergun (1952).

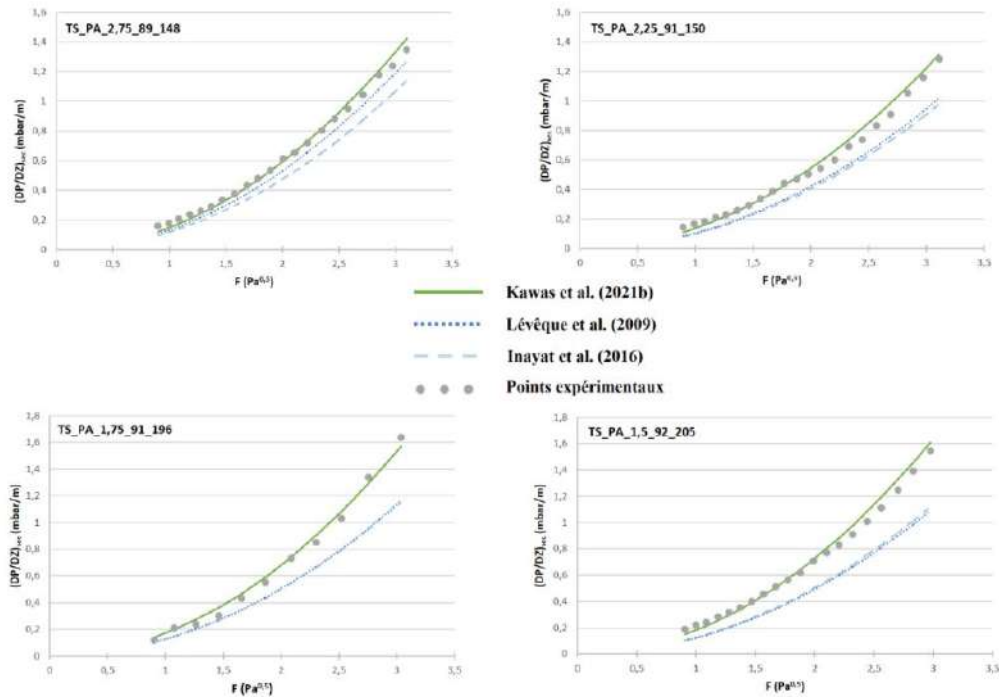


Figure III.7: Comparaison des corrélations évaluant les pertes de charge à sec

Tableau III.3: Les corrélations de la perte de charge à sec proposées dans la littérature

	Equations
Lévêque et al. (2009) Type : Mousse céramique β-SiC	$\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{\text{sec}} = 150 \frac{\mu_{\text{gaz}} (1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3 d_p^2} U_{\text{gaz}} + 1,85 \frac{\rho_{\text{gaz}} (1-\varepsilon)}{\varepsilon^3 d_p} U_{\text{gaz}}^2$
	$d_p = \frac{6 d_s}{4}$
Inayat et al. (2016) Type : Mousse à cellules ouvertes	$\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{\text{sec}} = \frac{32 \tau^2 \mu_{\text{gaz}} U_{\text{gaz}}}{\varepsilon d_{hg}^2} + \frac{\tau^3 \rho_{\text{gaz}} U_{\text{gaz}}^2}{2 \varepsilon^2 d_{hg}}$
	$d_{hg} = 4 \frac{\varepsilon}{S_{géo}}$
	$S_{géo} = 5,62 \frac{[1 - 0,971(1-\varepsilon)^{0,5}]}{\delta_{cellule} (1-\varepsilon)^{0,5}} (1-\varepsilon)$
	$\tau = 1 + 5,62 \frac{[1 - 0,971(1-\varepsilon)^{0,5}]}{4\varepsilon (1-\varepsilon)^{0,5}} (1-\varepsilon)$

2.2.2 Perte de charge pour un système diphasique à contre-courant

Dans ce paragraphe, l'analyse dimensionnelle est également utilisée pour évaluer la perte de charge pour un système diphasique à contre-courant (voir Annexe F). Des essais hydrodynamiques et de distillation ont été réalisés sur les internes TS pour différents débits liquides et avec trois systèmes différents, eau/air (714 points expérimentaux), eau/glycérol/air (520 points expérimentaux), et cyclohexane/n-heptane (46 points expérimentaux), comme vu dans le chapitre II (3.2). Tableau III.4 montre une comparaison des propriétés physico-chimiques d'un mélange eau/glycérol avec un système d'eau à une température de 20°C et sous une pression atmosphérique (Sheely, 1932) (Gregory, 1991).

Tableau III.4: Comparaison entre l'eau et un mélange eau/glycérol et cyclohexane/n-heptane

	Eau	Eau/glycérol	Cyclohexane/n-heptane
Composition (wt%)	100	21	20% en cyclohexane
Masse Volumique (kg/m³)	997,11	1046,55	672,08
Viscosité dynamique (Pa.s)	0,001021	0,001829	0,00031
Tension de Surface (dyne/cm)	73,8	71,9	20,4

Deux corrélations adimensionnelles pour prédire la perte de charge d'un système diphasique : avant et après le point de charge ($H_{g,h,1}$, $H_{g,h,2}$), respectivement équation III.8 et III.9, sont présentées ci-dessous. Pour la détermination des points de charge, la première méthode proposée dans chapitre II (3.2.1.3) est appliquée.

$$H_{g,h,1} = 2,07 Re_l^{1,85} \left(\frac{\rho_{gaz}}{\rho_{liq}} \right)^{0,8} \left(\frac{\mu_{gaz}}{\mu_{liq}} \right)^{0,58} \left(\frac{d_{h1}}{l_{fil}} \right)^{1,04} \varepsilon^{-7,8} \left(\frac{U_{gaz}}{U_{liq}} \right)^{1,82} \quad (III.8)$$

$$H_{g,h,2} = 1,32 Re_l^2 \left(\frac{\rho_{gaz}}{\rho_{liq}} \right)^{0,91} \left(\frac{\mu_{gaz}}{\mu_{liq}} \right)^{0,5} \left(\frac{d_{h1}}{l_{fil}} \right)^{1,17} \varepsilon^{-10,5} \left(\frac{U_{gaz}}{U_{liq}} \right)^{2,08} \quad (III.9)$$

avec $H_{g,h}$ calculé pour un système diphasique $\left(\frac{(\Delta P)}{(\Delta Z)}_h \frac{\rho_{liq} d_{h1}^3}{\mu_{liq}^2} \right)$. μ_{liq} est la viscosité dynamique du liquide en Pa.s, ρ_{liq} est la masse volumique du liquide en kg/m³, et d_{h1} est le diamètre hydraulique du nombre de Reynolds liquide, exprimé en m.

Pour ce système diphasique, le garnissage est supposé parfaitement mouillé. Etant donné cette hypothèse, la tension superficielle n'apparaît pas dans nos corrélations.

Les constantes et les différents exposants des équations III.8 et III.9 sont déterminés par la méthode des moindres carrés (voir chapitre II, 4.2). De plus, ε , l_{fil} , et d_{h1} sont inversement proportionnels à $(\Delta P/\Delta Z)_{h,1}$ et $(\Delta P/\Delta Z)_{h,2}$ (Kawas et al., 2021b). Comme montré dans la partie précédente, l'augmentation du taux de vide, du diamètre du fil et de la longueur du fil entraîne une diminution des pertes de charges.

Les deux corrélations (Eq. III.8 et III.9) nécessitent le calcul de Re_l et d_{h1} . Le diamètre hydraulique, noté d_{h1} (m), est exprimé en prenant en considération l'épaisseur du film liquide (Kawas et al., 2021b). Le diamètre hydraulique d_{h1} est égal à 4 fois le ratio de l'aire de

la section du passage du fluide A par le périmètre mouillé P_m (Eq. III.5 pour d_{hg}) avec $A = \pi ((r_{fil} + e)^2 - r_{fil}^2)$ et $P_m = 2 \pi r_{fil}$. L'expression final de d_{h1} sera :

$$d_{h1} = 2 \frac{((r_{fil} + e)^2 - r_{fil}^2)}{r_{fil}} \quad (III.10)$$

L'épaisseur liquide qui se développe sur les fils de nos garnissages (Figure III.8) est supposée proche de celle déterminée par l'approche de Nusselt (1916). Pour cela, il suffit de chercher la solution analytique pour un écoulement stationnaire d'un film d'épaisseur constante (e) le long d'un fil de rayon r_{fil} et en considérant la vitesse $U(r)$ constante :

$$U(r) = \frac{\rho_{liq} g}{2\mu_{liq}} \left[(r_{fil} + e)^2 \ln\left(\frac{r}{r_{fil}}\right) - \frac{1}{2}(r^2 - r_{fil}^2) \right] \quad (III.11)$$

g désigne l'accélération de la gravité.

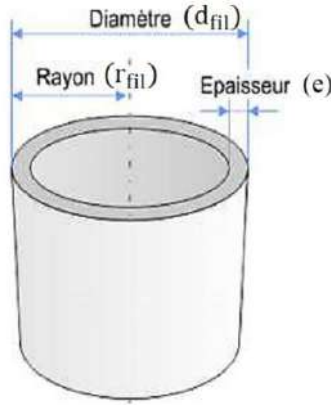


Figure III.8 : L'épaisseur du film liquide autour d'un fil du garnissage

A partir de cette équation, le débit linéique (m^2/s) est donné par :

$$q_1 = \frac{\rho_{liq} g}{3\mu_{liq}} e^3 \phi(\alpha_1) \quad (III.12)$$

avec $\alpha_1 = \frac{e}{r_{fil}}$ et la fonction :

$$\phi(x) = \frac{3(4(x+1)^4 \ln(x+1) - x(x+2)(3x(x+2)+2))}{16x^3} \quad (III.13)$$

D'autre part, le débit linéique peut aussi être définie par :

$$q_1 = \frac{Q_{par\ fil}}{\pi \left(\frac{r_{fil}}{2}\right)} \quad (III.14)$$

avec $Q_{par\ fil} = \frac{Q_{total}}{n_{fil}}$ (exprimé en m^3/s) et le nombre de fils :

$$n_{fil} = \frac{A_{colonne} (1 - \varepsilon)}{\pi (r_{fil})^2} \quad (III.15)$$

Puisque l'épaisseur du film et le diamètre hydraulique liquide sont directement liées au débit liquide, il y aura plusieurs valeurs du d_{hl} et e associées aux différents débits utilisés durant les essais hydrodynamiques. Les valeurs sont affichées en Annexe G.

D'un autre côté, le nombre de Reynolds liquide est donné par la relation (III.16), où U_{liq} est la vitesse du liquide (exprimée en m/s).

$$Re_l = \frac{U_{liq} \rho_{liq} d_{hl}}{\mu_{liq}} \quad (III.16)$$

La vitesse du liquide (U_{liq}) est calculée en divisant le débit liquide par fils ($Q_{par\ fil}$) par la section du passage du fluide (Kawas et al., 2021b):

$$U_{liq} = \frac{Q_{total}}{N_{fils} \pi ((r_{fil} + e)^2 - r_{fil}^2)} \quad (III.17)$$

En combinant l'expression du diamètre hydraulique liquide (Eq. III.10) et l'expression de la vitesse du liquide (Eq. III.17) avec l'équation III.16, la forme finale du nombre de Reynolds liquide adoptée dans nos corrélations est (Kawas et al., 2021b):

$$Re_l = \frac{2 Q_{total} \rho_{liq}}{n_{fil} \pi r_{fil} \mu_{liq}} \quad (III.18)$$

avec Q_{total} le débit liquide en m^3/s , μ_{liq} la viscosité dynamique du liquide en $Pa.s$, ρ_{liq} la masse volumique du liquide en kg/m^3 et r_{fil} le rayon réel du fil en m.

Les Figures III.9, III.10, et III.11 présentent les résultats obtenus pour des débits liquides compris entre 6,1 et 25,9 $m^3.m^{-2}.h^{-1}$ et une gamme de nombre de Reynolds du liquide allant de 16 à 340. La Figure III.9 montre que les corrélations (Eq. III.8 et Eq. III.9) sont bien applicables pour un système eau/air ; en effet les valeurs des pertes de charge obtenues par nos calculs sont semblables aux valeurs expérimentales. Avec 714 points expérimentaux venant des études hydrodynamiques à différents débits liquides, on obtient 11,28% hors l'intervalle $\pm 15\%$. Pour les essais hydrodynamiques du système eau/glycérol (avec 21 wt% glycérol), les résultats sont représentés en Figure III.10 ; avec 520 points expérimentaux, 25,2% sont hors $\pm 15\%$ et 5% des points sont hors le domaine $\pm 30\%$.

Avec ces deux systèmes opératoires, une partie des points avec un fort écart représente à nouveau les structures TS caractérisées par un diamètre de fil petit (ex : TS_PA_1,25_93_207, pour différents débits liquides). Une autre série des points avec des écarts de $\pm 30\%$, symbolise les valeurs des pertes de charge obtenues avec des faibles facteurs F (pour les données calculées avant le point de charge) (Kawas et al., 2021b).

Par rapport à la comparaison des résultats obtenus avec l'eau et le système eau/glycérol, on observe que la perte de charge diminue en augmentant la viscosité (Eq. III.8 et III.9) (Tableau III.4). Par exemple, le TS_PA_2,75_89_148 présente une perte de charge de 1,46 mbar/m (pour $F = 2 Pa^{0.5}$ et un système eau/air) qui est supérieure à la perte de charge obtenue avec un système eau/glycérol/air (1,2 mbar/m pour $F = 2 Pa^{0.5}$). Le même comportement est observé avec la plupart des garnissages pour tous les essais effectués.

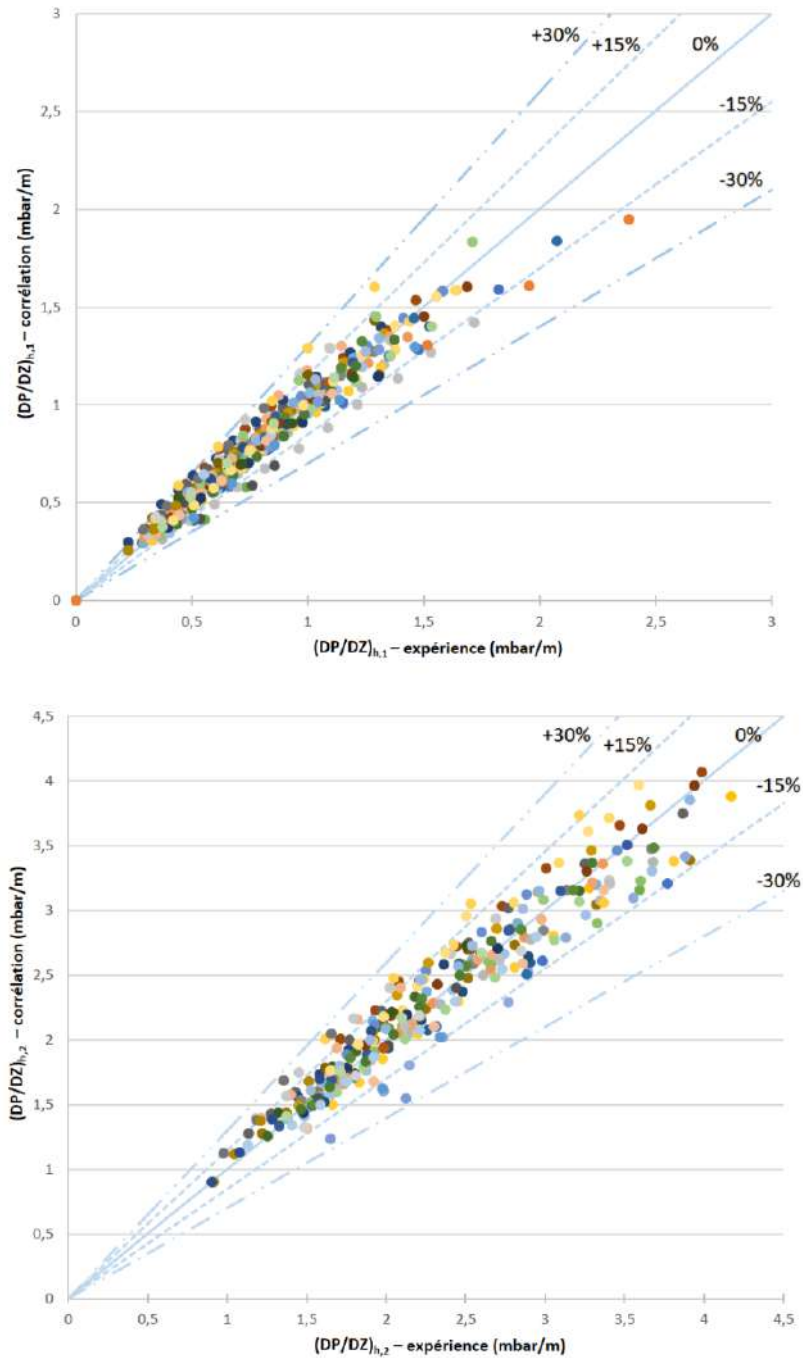


Figure III.9: Courbe de parité des corrélations évaluant la perte de charge pour un système eau/air à contre-courant, respectivement avant (Eq. III.8) et après le point de charge (Eq. III.9). Les cercles colorés permettent d'identifier les différentes configurations TS pour des débits liquides différents (principalement $9,15 - 15,25$ et $21,36 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$)

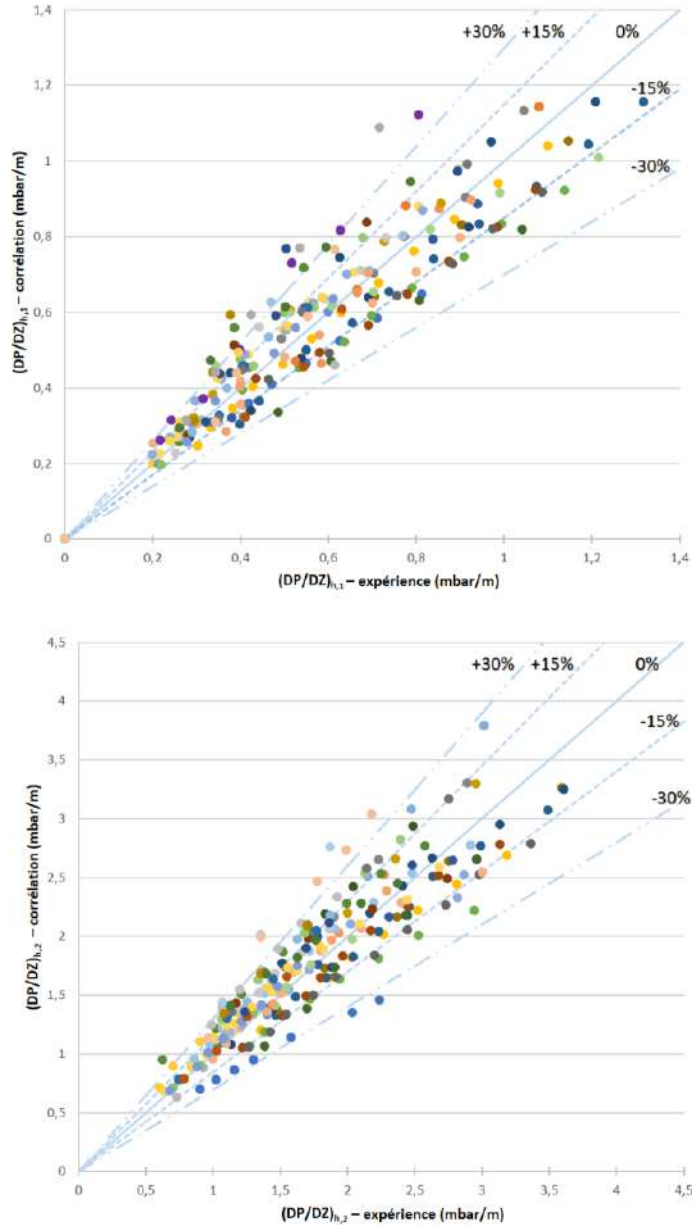


Figure III.10: Courbe de parité des corrélations évaluant la perte de charge pour un système eau/glycérol/air à contre-courant, respectivement avant (Eq. III.8) et après le point de charge (Eq. III.9). Les cercles colorés permettent d'identifier les différentes configurations TS pour des débits liquides différents (principalement 9,15 – 15,25 et 21,36 m³.m⁻².h⁻¹)

La Figure III.11 montre que ces mêmes corrélations (Eq. III.8 et Eq. III.9) sont moins applicables pour un mélange de cyclohexane/n-heptane, particulièrement pour la prédiction de la perte charge avant le point de charge. Un écart important est observé avec les valeurs de $\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{h,1}$ pour des facteurs F inférieurs à 0,7 Pa^{0,5}; la corrélation proposée dans l'Eq. III.8 sous-estime les mesures expérimentales. Cependant, ces faibles facteurs F ne correspondent pas aux valeurs industrielles ; un facteur F supérieur à 1,5 Pa^{0,5} est plus souvent observé dans les pilotes de distillation (Kawas et al., 2021b).

Pour l'évaluation de la perte de charge après le point de charge et avec 46 points expérimentaux obtenus via la distillation, 17,4% sont hors notre premier domaine de définition ($\pm 15\%$) et 2% hors du deuxième ($\pm 30\%$). La plupart de ces points représentent les valeurs de $\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{h,2}$ pour des structures ayant des diamètres de fil petits. Pour un d_{fil} faible, l'hypothèse complètement mouillé est alors sans doute fausse.

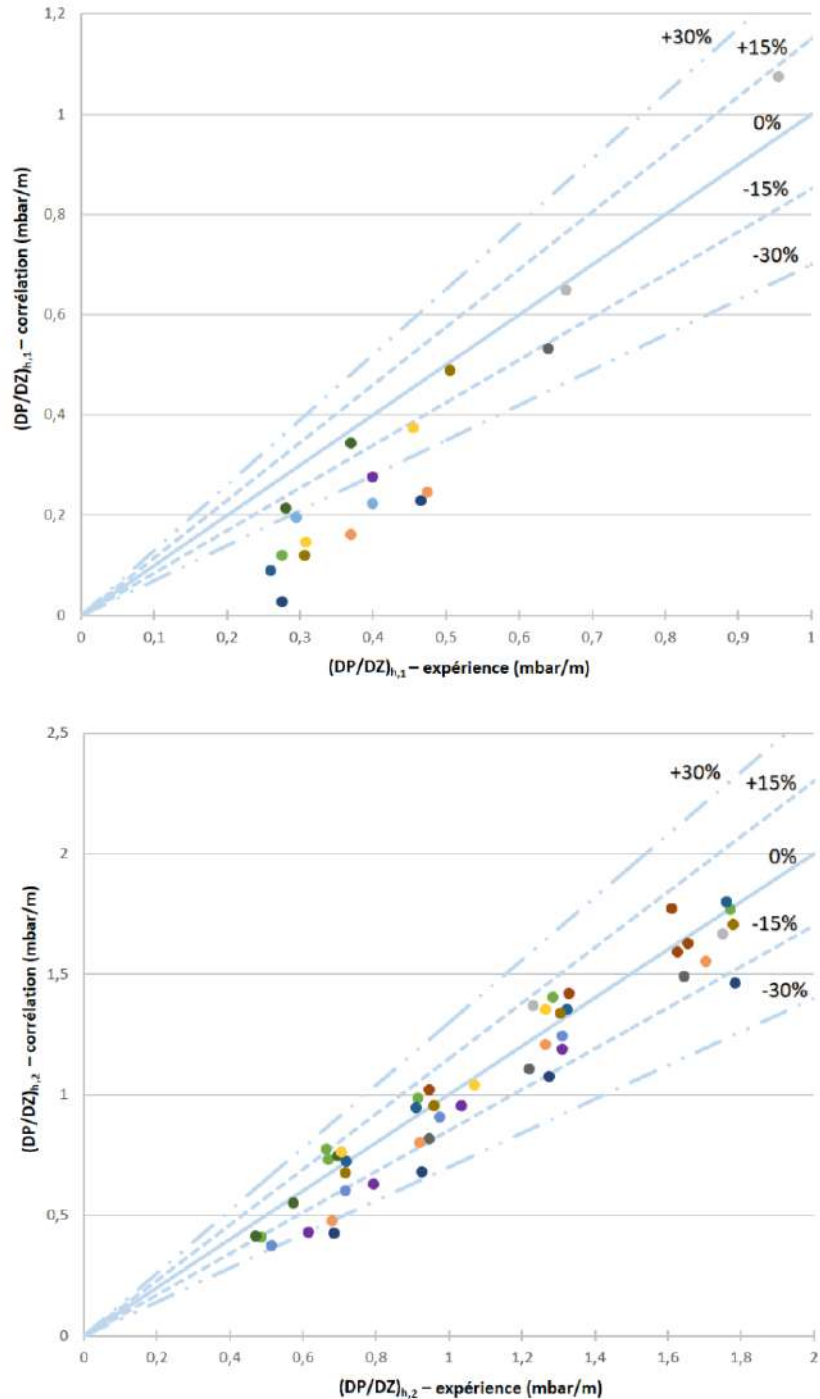


Figure III.11: Courbe de parité des corrélations évaluant la perte de charge pour un système cyclohexane/n-heptane à contre-courant, respectivement avant (Eq. III.8) et après le point de charge (Eq. III.9).

Les cercles colorés permettent d'identifier les différentes configurations TS pour des débits liquides différents

La corrélation de la perte de charge pour un système diphasique avant le point de charge (Eq. III.8) est comparée à une corrélation proposée dans la littérature par Lévêque et al. (2009). Cette dernière évalue la perte de charge des mousses céramiques pour un système diphasique à contre-courant pour différents débits liquides (Tableau III.5). Elle est corrélée à partir de l'expression de la perte de charge à sec et le nombre de Reynolds liquide. Cette relation est inspirée des travaux de Moritz et Hasse (1999) et Kolodziej et al. (2004) qui ont réalisé des études pour évaluer les pertes de charge d'un garnissage catalytique structuré (le KATAPAK) pour un système monophasique et diphasique. Les résultats en Figure III.12 sont présentés pour deux systèmes différents (eau/air et eau/glycérol/air) pour un débit liquide égal à $21,36 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$. Les résultats montrent que la corrélation développée par Lévêque et al. (2009) surestime la perte de charge expérimentale des TS (avant le point de charge) (Kawas et al., 2021b).

Tableau III.5: La corrélation de la perte de charge pour un système diphasique proposée dans la littérature

	Equation
Lévêque et al. (2009) Type : Mousse céramique β -SiC	$\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{h,1} = 1,1 \text{Re}_l^{0,2} \left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{\text{sec}}$

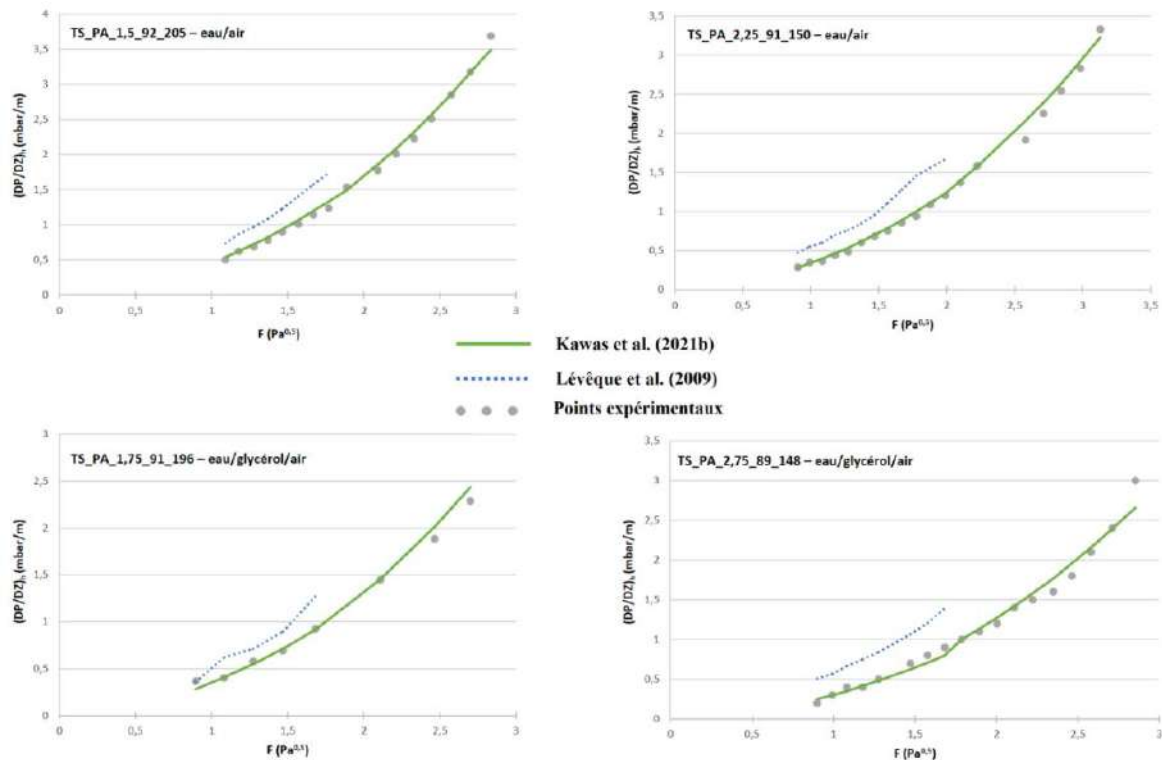


Figure III.12: Comparaison des corrélations évaluant les pertes de charge pour un système diphasique (pour un débit liquide de $21,36 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$)

En conclusion, les corrélations développées par la méthode d'analyse dimensionnelle fournissent la meilleure prédiction des performances hydrodynamiques des TS.

2.2.3 Vitesse à l'engorgement

La corrélation caractérisant la vitesse à l'engorgement a été déterminé par correspondance avec les vitesses des garnissages TS obtenues durant les essais hydrodynamiques d'un système diphasique eau/air (44 points expérimentaux) et eau/glycérol/air (33 points) pour plusieurs débits liquides et durant les essais de distillation avec un mélange de cyclohexane/n-heptane (4 points au total). Chaque garnissage présente une vitesse à l'engorgement (U_F) différente et dépendante du débit liquide et du mélange utilisé (Kawas et al., 2021b).

Cette corrélation a été mise en place à partir d'une analyse dimensionnelle modélisant les différentes grandeurs physiques qui définissent la vitesse à l'engorgement. Les étapes de cette analyse sont présentées en Annexe F et l'expression finale est donnée par l'équation III.19 sous forme adimensionnelle :

$$Re_{g_F} = 403,37 Re_l^{0,4} \left(\frac{\rho_{gaz}}{\rho_{liq}} \right)^{0,8} \left(\frac{\mu_{liq}}{\mu_{gaz}} \right)^{0,5} \varepsilon^{1,76} \left(\frac{l_{fil}^{0,28} d_{hg}}{d_{hl}^{1,28}} \right) \quad (III.19)$$

avec μ_{gaz} et μ_{liq} les viscosités dynamiques du gaz et du liquide en Pa.s , ρ_{gaz} et ρ_{liq} les masses volumiques du gaz et du liquide en kg/m³, l_{fil} la longueur du fil en m, d_{hg} et d_{hl} les diamètres hydrauliques du gaz et du liquide en m, ε le taux de vide, et Re_{g_F} le nombre de Reynolds du gaz à l'engorgement. Il est défini par $Re_{g_F} = \frac{U_F \rho_{gaz} d_{hg}}{\varepsilon \mu_{gaz}}$.

Dans l'équation III.19, trois termes peuvent être distingués, l'influence de l'hydrodynamique, des propriétés physico-chimiques, et des paramètres géométriques. L'exposant attaché au nombre Re_L est positif. Donc, la vitesse du liquide est proportionnelle à la vitesse de l'engorgement.

La Figure III.13 montre les résultats de la corrélation versus les points expérimentaux sous forme d'un facteur F, exprimé en Pa^{0.5}. Les vitesses à l'engorgement calculées concordent avec celles obtenues expérimentalement ; il y a 30,86% des points qui sont hors des $\pm 15\%$. La plupart de ces points appartiennent au système eau/glycérol/air. Partant de ce fait, des essais supplémentaires doivent être alors réalisés avec ce système pour modifier les exposants et la constante. L'objectif est de trouver une unique corrélation permettant la prédiction de la vitesse à l'engorgement d'un système diphasique quelles que soient ses propriétés physico-chimiques. D'autres points (liés aux deux systèmes, eau/air et eau/glycérol/air) sont aussi observés hors des $\pm 15\%$. Ils représentent principalement certains facteurs F (F_F) qui sont en dehors de notre gamme expérimentale. La corrélation (Eq. III.19) surestime les valeurs expérimentales du facteur F à l'engorgement inférieurs à 2,24 Pa^{0.5} et sous-estime les F_F supérieurs à 3,4 Pa^{0.5} (Kawas et al., 2021b).

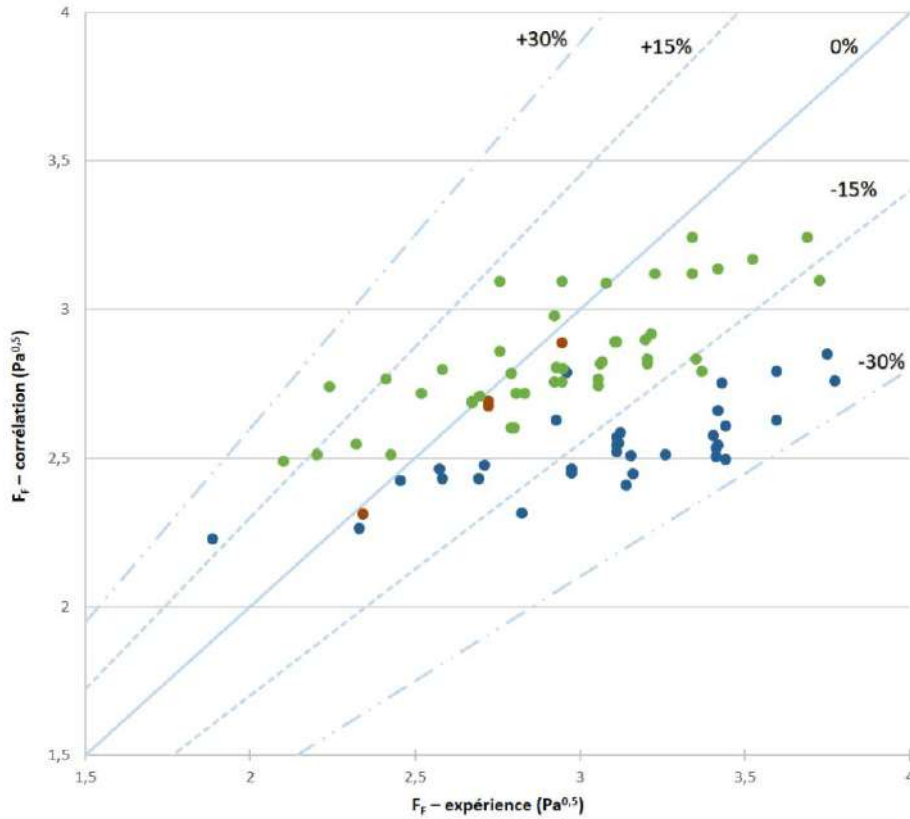


Figure III.13: Courbe de parité de la corrélation évaluant F à l'engorgement en $\text{Pa}^{0,5}$
Les cercles verts représentent le système eau/air, les cercles bleus représentent le système eau/glycérol/air et les cercles rouges représentent le mélange cyclohexane/n-heptane.

2.2.4 HEPT

La corrélation évaluant la HEPT est développée par la méthode d'analyse dimensionnelle (détail en Annexe F) et est basée sur 15 points expérimentaux obtenus à travers des essais de distillation avec un mélange de cyclohexane/n-heptane. L'équation III.20 montre la forme finale de la relation où la HEPT est exprimée en m.

$$\text{HEPT} = 0,3445 \frac{d_{\text{fil}}^{2,58}}{S_{\text{géo}}^{4,24} l_{\text{fil}}^{5,82}} \left(\frac{\rho_{\text{liq}}}{\rho_{\text{gaz}}} \right)^{2,47} \left(\frac{\mu_{\text{liq}}}{\mu_{\text{gaz}}} \right)^{0,1} \quad (\text{III.20})$$

avec μ_{gaz} , μ_{liq} , ρ_{gaz} et ρ_{liq} les viscosités dynamiques et les masses volumiques du gaz et du liquide, l_{fil} et d_{fil} la longueur et le diamètre du fil, et $S_{\text{géo}}$ la surface spécifique du garnissage.

Il apparaît plus pertinent pour cette corrélation de faire apparaître $S_{\text{géo}}$ car la surface spécifique du garnissage est directement liée à l'efficacité de transfert de matière.

L'équation III.20 est composée de deux parties. La première exprimée comme $\frac{d_{\text{fil}}^{2,58}}{S_{\text{géo}}^{4,24} l_{\text{fil}}^{5,82}}$, traduit

les caractéristiques géométriques du garnissage, tandis que la deuxième, $\left(\frac{\rho_{\text{liq}}}{\rho_{\text{gaz}}} \right)^{2,47} \left(\frac{\mu_{\text{liq}}}{\mu_{\text{gaz}}} \right)^{0,1}$, traduit les propriétés physico-chimiques du système employé (Kawas et al., 2021b). Contrairement à toutes les corrélations précédentes, la surface spécifique apparaît dans ces

équations. Les performances hydrodynamiques (pertes de charge et vitesse à l'engorgement) sont exprimées en terme du taux de vide ε alors que le transfert de matière est exprimé en terme de la surface $S_{géo}$. Ce dernier est inversement proportionnel à la HEPT (Kawas et al., 2021b). Ce comportement a été observé dans la partie 2.1.2. La diminution de la surface spécifique limite le transfert de masse (Kawas et al., 2021a).

Les résultats montrant la HEPT corrélée en fonction de la HEPT expérimentale pour chaque garnissage sont présentés en Figure III.14. Les valeurs obtenues par la corrélation sont assez satisfaisantes car parmi les 15 points expérimentaux, seulement 2 points sont hors des +/- 15%. Cependant, la corrélation obtenue (Eq. III.20) nécessite d'être améliorée puisqu'elle est basée sur 15 points expérimentaux seulement. Des essais supplémentaires doivent être réalisés avec d'autres systèmes (ex : système chlorobenzène/éthylebenzène).

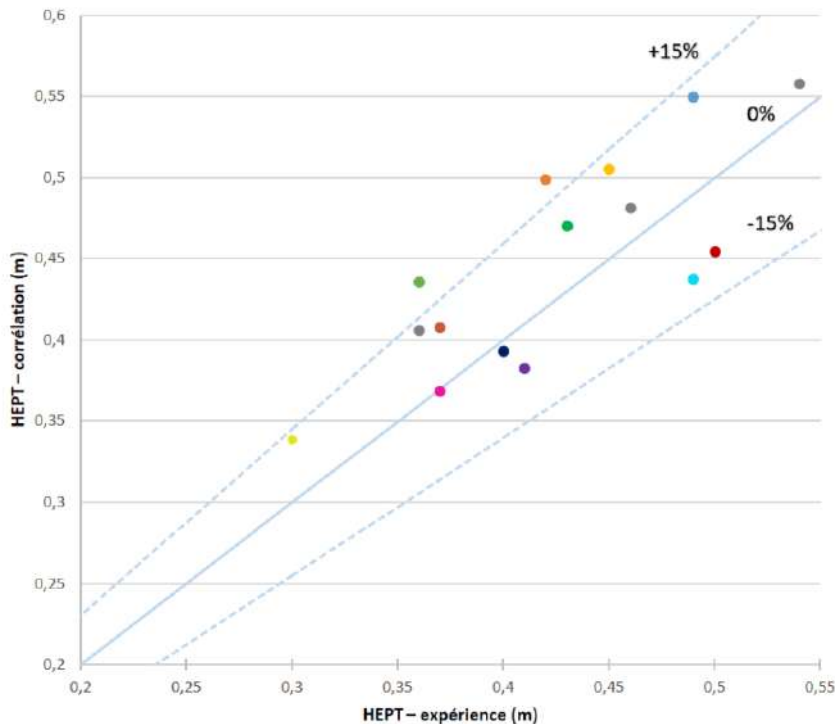


Figure III.14: Les résultats de la corrélation évaluant la HEPT. Les cercles colorés permettent d'identifier les différentes configurations TS

2.3 Interprétation des phénomènes d'écoulement

Une étude expérimentale préalable sur l'écoulement d'un film liquide sur un fil et ces intersections (Dejean et al., 2020) a permis d'établir une cartographie des différents régimes d'écoulement : régime d'inertie, de capillarité et de mouillage (Figure III.15). Un banc d'essai a été alors réalisé afin de d'étudier l'écoulement liquide sur des fils dans différentes conditions. Les mesures sont réalisées par ombroscopie à l'aide d'une caméra rapide et d'un éclairage par panneau led à grande uniformité et puissance. Les images obtenues permettent de caractériser qualitativement l'écoulement liquide (Dejean et al., 2020).

Afin d'avoir le liquide réparti de manière optimale sur l'ensemble des fils du garnissages TS, le régime de mouillage est visé. Pour caractériser les transitions d'un régime à un autre, le nombre de weber (Eq. III.21) et le diamètre adimensionnel (Eq. III.22) sont calculés.

$$We = \frac{\rho_{liq} U_{liq}^2 d_{fil}}{\gamma} \quad (III.21)$$

$$d^* = \frac{d_{fil}}{l_c} \quad (III.22)$$

avec γ la tension superficielle du liquide en N/m et l_c la longueur de capillaire en m.

La longueur de capillaire est donnée par la relation suivante :

$$l_c = \sqrt{\frac{\gamma}{\rho_{liq} g}} \quad (III.23)$$

avec g l'accélération de la gravité = 9,8 m/s².

Comme montre la Figure III.15, pour atteindre le régime de mouillage, il faut avoir un nombre de Weber égal à 1 et un diamètre adimensionnel supérieur à 1,3. En effet, le nombre de Weber We aide à déterminer l'équilibre nécessaire entre l'inertie et la tension superficielle, alors que l'augmentation de d^* réduit l'influence de la tension superficielle.

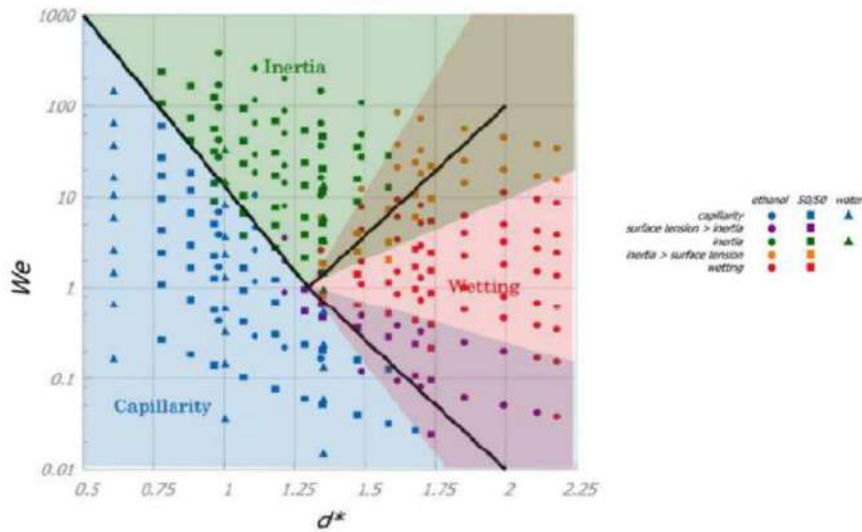


Figure III.15: La cartographie des régimes d'écoulement des liquides pour l'éthanol, l'eau, et un mélange de 50/50 (Dejean et al., 2020)

La Figure III.16 montre les différents garnissages TS pour les différentes conditions opératoires. En prenant les valeurs du diamètre d_{fil} et de la longueur l_{fil} pour chaque garnissage, les TS correspondants ne vérifient pas les contraintes du mouillage ; ils se positionnent dans le régime de capillarité.

Parmi les quinze garnissages fabriqués, une seule structure est observée dans le régime de mouillage (TS_PA_2,75_89_148 avec un diamètre $d_{fil} = 2,64$ mm) pour un système de cyclohexane/n-heptane. Cette structure montre une faible efficacité de séparation, car sa faible surface spécifique $S_{géo}$ (143,72 m²/m³) entraîne une augmentation de la HEPT.

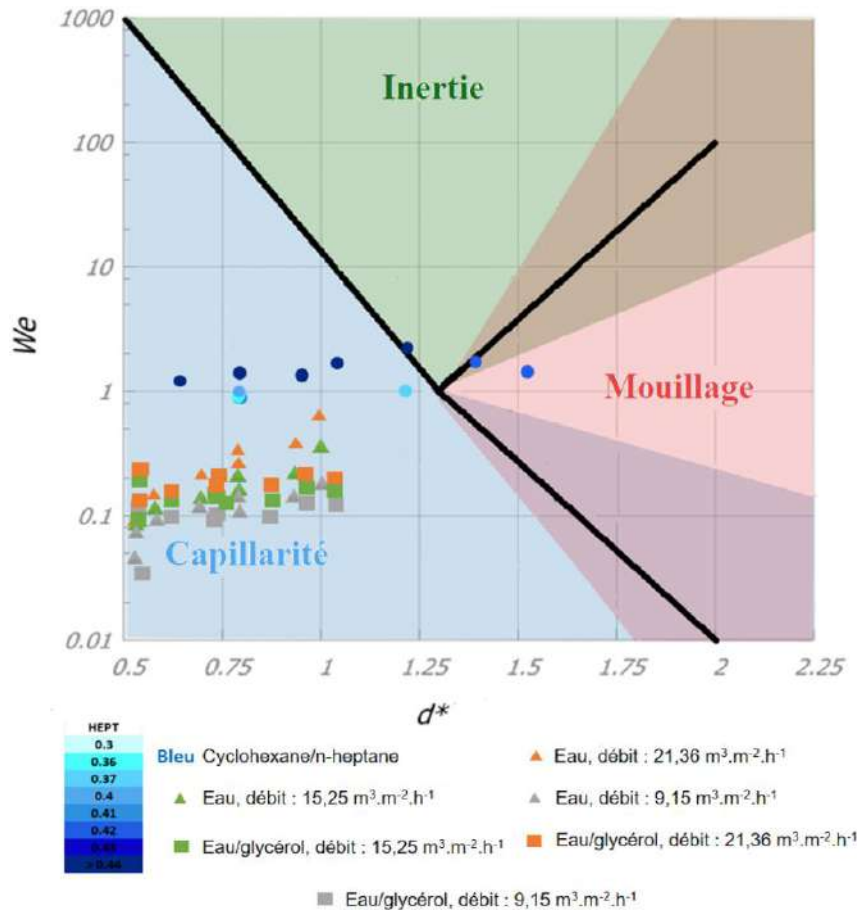


Figure III.16: La cartographie des régimes d'écoulement des liquides avec nos garnissages TS

Ainsi, les configurations TS avec les performances souhaitées (faible HEPT) ont été identifiées dans le régime capillaire car : (Kawas et al., 2021a)

1. Même si le mouillage est partiel dans cette zone, les garnissages sont efficaces (en termes de transfert de matière) grâce à une surface spécifique importante. D'un point de vue morphologique et en se basant sur la conception des TS, il est impossible d'obtenir une structure avec une faible HEPT dans le régime de mouillage, car la diminution du diamètre du fil (avec une surface $S_{géo}$ et un taux de vide ε élevés) entraîne toujours une diminution du diamètre adimensionnel d^* (Eq. III.22).
2. La cartographie adoptée (Figure III.15) ne représente pas les conditions expérimentales réelles : les expériences réalisées pour l'étude des régimes d'écoulement sont basées sur (i) un élément de garnissage, (ii) pour un écoulement monophasique, (iii) avec l'eau et l'éthanol (Dejean et al., 2020). L'influence de l'air à contre-courant sur un film liquide ainsi que l'influence du système opératoire (cyclohexane/n-heptane) n'apparaissent pas dans les résultats.
3. D'autres phénomènes d'écoulement contribuent à augmenter l'efficacité du garnissage (ex : l'apparition de gouttelettes). Ce comportement a été observé dans une étude précédente (Dejean et al., 2020). Un flux de gouttelettes et un écoulement sur un seul fil sont détectés dans la zone de capillarité (où la tension superficielle est prédominante).

2.4 Optimisation morphologique

Ce chapitre est dédié à l'optimisation des paramètres géométriques du TS basées sur les corrélations obtenues précédemment.

2.4.1 Les objectifs

Après avoir développé les corrélations nécessaires pour caractériser les performances des garnissages TS en terme de capacité et d'efficacité, l'optimisation morphologique est mise en place. Les objectifs visés durant l'optimisation multicritère afin d'obtenir un garnissage TS performant sont (Kawas et al., 2021b):

1. La minimisation de la perte de charge avec un objectif de $\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_h = 1$ mbar/m pour un débit liquide de $20 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ et un F de $2 \text{ Pa}^{0,5}$
2. La maximisation de la vitesse à l'engorgement ou facteur F avec un objectif de F_F de $3,2 \text{ Pa}^{0,5}$ (ou $U_F = 1,83 \text{ m/s}$)
3. La minimisation de la HEPT avec un objectif d'une HEPT de $0,25 \text{ m}$

Les objectifs seront divisés en deux parties. La première partie (Section 2.4.3.1) considère les objectifs 2 et 3 comme étant les deux fonctions objectives tandis que la deuxième partie (Section 2.4.3.2) résout le problème d'optimisation avec les objectifs 1 et 3.

Les résultats obtenus après optimisation sont comparés au garnissage structuré Mellapak 250Y ayant une HEPT de $0,38 \text{ m}$, un F_F de $2,5 \text{ Pa}^{0,5}$ (ou $U_F = 1,43 \text{ m/s}$), et une perte de charge de $\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_h = 2,25 \text{ mbar/m}$ pour un débit liquide de $20 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$, $F = 2 \text{ Pa}^{0,5}$ et un système de cyclohexane/n-heptane à contre-courant (donnée Sulzer Chemtech via le logiciel SULCOL) (Sulzer, 2015).

2.4.2 Les contraintes

Comme vu précédemment, en négligeant les intersections des TS, les caractéristiques de chaque garnissage (le taux de vide et la surface spécifique) peuvent être calculées en fonction des paramètres géométriques (Annexe E).

Les deux angles de base du TS ont des valeurs constantes pour tous les garnissages imprimés avec $\Theta_1 = 30^\circ$ et $\Theta_2 = 40^\circ$. Ainsi, les corrélations des pertes de charge, de la vitesse de l'engorgement et de la HEPT (Eq. III.9, Eq. III.19, Eq. III.20) peuvent être exprimées uniquement en fonction de deux variables : d_{fil} et l_{fil} .

Pour l'optimisation, ces deux variables ont des contraintes qui sont liés aux 15 garnissages TS déjà fabriqués (intervalle restreint sur le diamètre d_{fil} et la longueur l_{fil}):

$$1,2 \text{ mm} < d_{fil} < 2,64 \text{ mm}$$

$$\text{et } 10 \text{ mm} < l_{fil} < 19 \text{ mm}$$

D'autres essais d'optimisation ont été accomplis en élargissant cette gamme (intervalle large sur le diamètre d_{fil} et la longueur l_{fil}):

$$1,2 \text{ mm} < d_{\text{fil}} < 4 \text{ mm}$$

et $8 \text{ mm} < l_{\text{fil}} < 20 \text{ mm}$

Finalement, en se basant sur la partie 2.3, les contraintes du mouillage ne seront pas utilisées dans l'étude d'optimisation.

2.4.3 Résultat final

En appliquant les corrélations de la partie 2.2, en fixant les contraintes du diamètre d_{fil} et de la longueur l_{fil} , et en définissant les objectifs visés, un ensemble de solutions respectant les conditions est généré par les différentes méthodes d'optimisation multicritères (voir Chapitre II, 5).

Les résultats sont exposés dans cette partie. Les méthodes d'épsilon contrainte et le *goal programming* sont dans un premier temps appliquées et sont vérifiées par la troisième méthode : I-MODE. Les résultats sont présentés selon les contraintes et les fonctions objectives prises en compte.

2.4.3.1 Fonctions objectives : Vitesse à l'engorgement et HEPT

La Figure III.17 illustre l'ensemble des solutions de HEPT et U_F obtenues en vérifiant les contraintes du diamètre d_{fil} et de la longueur l_{fil} . Tableau III.6 montre les solutions numériques d'épsilon contrainte et du *goal programming*.

Les deux *Pareto* obtenus sont quasiment identiques (intervalle large ou restreint sur le diamètre d_{fil} et la longueur l_{fil}). Les solutions d'épsilon contrainte et du *goal programming* sont aussi vérifiées par I-MODE et nos garnissages TS paraissent plus efficaces que le M250Y. Comme montre le Tableau III.6, les solutions proposées possèdent des longueurs et des diamètres de fils proches des bornes inférieures ($d_{\text{fil}} \approx 1,6 \text{ mm}$ et $l_{\text{fil}} \approx 10 \text{ mm}$). La diminution du diamètre du fil (augmentation de la surface $S_{\text{géo}}$) entraîne une diminution de la HEPT (Kawas et al., 2021a).

En considérant les objectifs 2 et 3, des solutions proches de l'objectif sont obtenues (HEPT = 0,25 m et $F_F = 3,2 \text{ Pa}^{0,5}$). La configuration TS caractérisée par ces performances est la configuration proposée par les méthodes d'épsilon contrainte et du *goal programming* (Tableau III.6). L'analyse du *front de Pareto* pour cette étude d'optimisation montre que si une vitesse d'engorgement de 1,83 m/s est visée, il est possible de fabriquer un garnissage TS avec une HEPT de 0,26 m (triangle vert – Figure III.17).

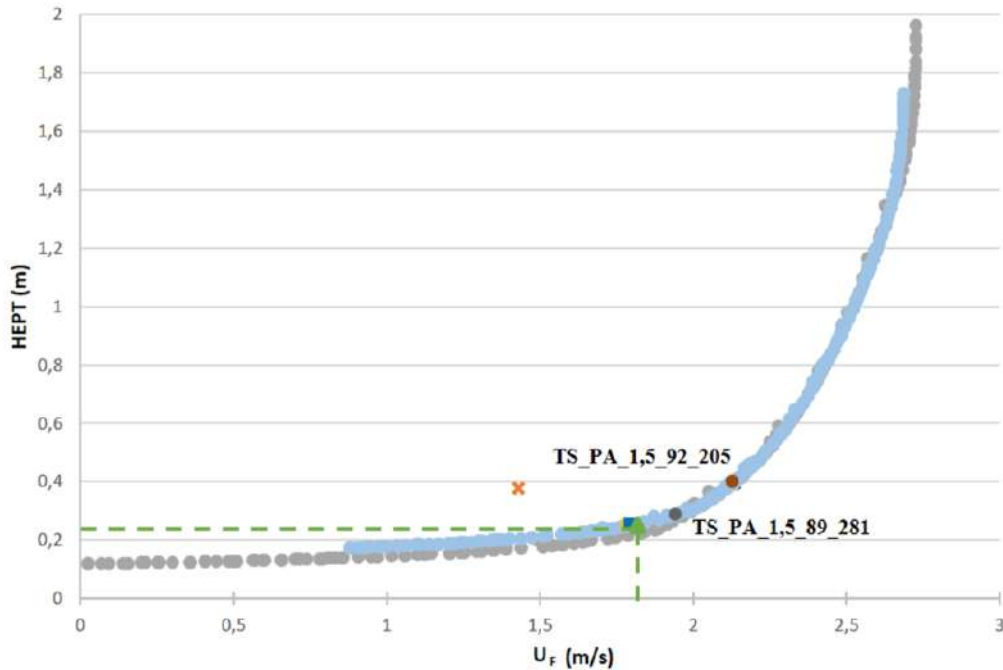


Figure III.17: L'ensemble des solutions de U_F et HEPT
 (gris) : pour un intervalle large sur le diamètre d_{fil} et la longueur l_{fil} ,
 (bleu) : pour un intervalle restreint sur le diamètre d_{fil} et la longueur l_{fil} .
 Les carrés bleus et jaunes représentent respectivement les solutions d'epsilon contrainte et du goal programming. Le triangle vert représente l'objectif visé. L'étoile orange représente les performances du Mellapak 250Y.

Tableau III.6: Les solutions numériques d'epsilon contrainte et du goal programming pour un intervalle large et restreint sur d_{fil} et l_{fil}

Paramètres	Intervalle large et restreint	
	Epsilon contrainte	Goal programming
d_{fil} (mm)	1,57	1,58
l_{fil} (mm)	10,14	10,15
Taux de vide	0,876	0,875
$S_{géo}$ (m^2/m^3)	290,54	291,89
HEPT (m)	0,26	0,25
U_F (m/s)	1,79	1,78
F_F ($Pa^{0,5}$)	3,14	3,12

Il existe déjà une configuration TS imprimée, le TS_PA_1,5_89_281 ayant les mêmes caractéristiques géométriques (diamètre d_{fil} et longueur l_{fil}) proposées par I-MODE. Ce garnissage se caractérise par une surface $S_{géo} = 252,42 m^2/m^3$ et un taux de vide $\varepsilon = 0,907$ avec un diamètre $d_{fil} = 1,3 mm$ et une longueur $l_{fil} = 10 mm$ (valeurs réelles mesurées). D'après les études expérimentales déjà réalisées, cet interne présente une forte efficacité (HEPT = 0,3 m), 20% proche de la valeur visée. Mais en terme de capacité, les expériences ont démontré que le TS_PA_1,5_89_281 a une valeur à l'engorgement de 2,2 $Pa^{0,5}$, avec un écart de 31% entre la valeur expérimentale et la valeur visée de 3,2 $Pa^{0,5}$. La valeur de F à l'engorgement présente ainsi un fort écart par rapport à la valeur expérimentale ; l'équation

III.19 doit être améliorée avec des essais supplémentaires pour obtenir une corrélation finale permettant d'évaluer la vitesse à l'engorgement sous diverses conditions opératoires.

Les caractéristiques d'un autre garnissage, le TS_PA_1,5_92_205, sont aussi proposées par I-MODE (un diamètre $d_{fil} = 1,29$ mm, une longueur $l_{fil} = 12$ mm, une surface $S_{géo} = 182,55$ m²/m³ et un taux de vide $\varepsilon = 0,935$). Les écarts relatifs des HEPT et F_F (obtenus expérimentalement) avec les valeurs cibles sont respectivement égaux à 37,5% et 47%.

2.4.3.2 Fonctions objectives : Perte de charge et HEPT

La Figure III.18 illustre les deux courbes de Pareto représentant les solutions de la perte de charge et de la HEPT. Ces deux Pareto se superposent, c'est pourquoi, la méthode du *goal programming* offre aussi une solution identique pour les deux cas. Les solutions de I-MODE vérifient toujours celle du *goal programming* tandis que la solution d'épsilon contrainte est ici une solution non-dominante. Comme montre la Figure III.18, les résultats attendus après l'étude de l'optimisation sont retrouvés avec des pertes de charge faibles pour des HEPT > 0,5m ou des pertes de charge importantes avec des meilleures efficacités de séparation.

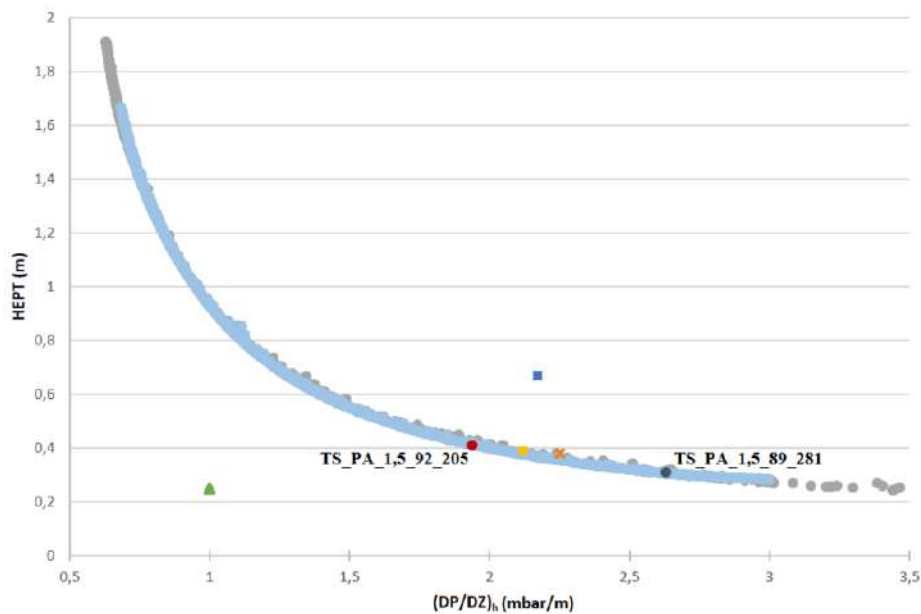


Figure III.18: L'ensemble des solutions de la perte de charge et la HEPT
 (gris) : pour un intervalle large sur le diamètre d_{fil} et la longueur l_{fil} ,
 (bleu) : pour un intervalle restreint sur le diamètre d_{fil} et la longueur l_{fil}
 Les carrés bleus et jaunes représentent respectivement les solutions d'épsilon contrainte et du *goal programming*. Le triangle vert représente l'objectif visé. L'étoile orange représente les performances du Mellapak 250Y.

Les deux solutions retrouvées par I-MODE sont quasiment les mêmes solutions présentées en section 2.4.3.1. L'interne TS_PA_1,5_89_281 fabriqué est proche de la première solution et a une HEPT de 0,3 m (Figure III.18) avec un écart relatif de 16% entre la HEPT expérimentale et la HEPT visée (Kawas et al., 2021b). En comparant la valeur de la perte de charge calculée par les corrélations avec la valeur cible (1 mbar/m pour un débit liquide de 20 m³.m⁻².h⁻¹ et un F de 2 Pa^{0,5}), un écart de 62% est obtenu.

Le garnissage TS_PA_1,5_92_205 imprimé est de la deuxième solution proposée par I-MODE (Figure III.18). Cet interne a été aussi imprimé en acier inoxydable (partie 2.1). Les études expérimentales ont montré que le TS_In_1,5_92_205 est plus performant que la référence (M250Y) en termes de capacité (perte de charge -33% pour $F=2 \text{ Pa}^{0,5}$) et efficacité (HEPT - 2%). En outre, nos corrélations prédisent une HEPT avec un écart de 10% entre la valeur expérimentale et la valeur calculée et pour la perte de charge un écart de 3%. D'un point de vue de la perte de charge du TS_In_1,5_92_205, celle-ci est toujours loin de notre objectif (perte de charge visée = 1 mbar/m pour $F = 2 \text{ Pa}^{0,5}$ et perte de charge de l'interne = 1,4 mbar/m).

Il existe aussi le TS_PA_1,5_90_238 ayant approximativement les mêmes propriétés du garnissage retrouvé par la méthode du *goal programming* en Tableau III.7 : une surface $S_{\text{géo}} = 198,93 \text{ m}^2/\text{m}^3$, un taux de vide $\varepsilon = 0,932$, un diamètre $d_{\text{fil}} = 1,19 \text{ mm}$ et une longueur $l_{\text{fil}} = 11 \text{ mm}$. Les essais expérimentaux de transfert de matière ont confirmé nos calculs ; le TS_PA_1,5_90_238 se caractérise par une faible efficacité (HEPT = 0,39 m) et une perte de charge proche de celle du M250Y (2,12 mbar/m pour $F = 2 \text{ Pa}^{0,5}$), mais reste néanmoins loin de l'objectif. Les écarts relatifs sont de 36% et 53% (respectivement) entre les valeurs expérimentales et nos objectifs.

Tableau III.7: La solution numérique du goal programming pour un intervalle large et restreint sur d_{fil} et l_{fil}

Paramètres	Intervalle large et restreint
	<i>Goal programming</i>
d_{fil} (mm)	1,2
l_{fil} (mm)	10,86
Taux de vide	0,934
$S_{\text{géo}}$ (m^2/m^3)	203,207
HEPT (m)	0,39
$(\Delta P/\Delta Z)_h$	2,12

3. Conclusion

Les garnissages Tetrasplines TS innovants ayant des propriétés géométriques et morphologiques intéressantes (ex : degré de vide et surface spécifique élevées) sont fabriqués par la fabrication additive. Des études hydrodynamiques sont réalisées sur les TS afin de déterminer les valeurs de perte de charge et les vitesses à l'engorgement en utilisant deux systèmes différents, eau/air et eau/glycérol/air. L'efficacité en transfert de matière est déterminée par la mesure de la HEPT du garnissage. Cette mesure s'effectue par une distillation d'un mélange de cyclohexane/n-heptane.

Des corrélations permettant de prédire les performances hydrodynamiques et de séparation des internes sont déterminées via l'analyse dimensionnelle. Ces corrélations, basées sur nos résultats expérimentaux, permettent d'analyser les performances des garnissages et d'établir un lien entre les propriétés d'usage et les caractéristiques géométriques et morphologiques.

Enfin, une optimisation morphologique des structures est réalisée suivant trois méthodes d'optimisation multicritère. Avec deux fonctions objectives et des contraintes bien précises, un assortiment de solutions respectant toutes les conditions est obtenu. L'analyse du *front de Pareto* a montré que si une HEPT de 0,26 m est visée, une vitesse d'engorgement de 1,83 m/s est obtenue.

Parmi les solutions proposées par ce *front de Pareto*, trois solutions correspondent à trois différents garnissages TS existants :

- 1) L'interne TS_PA_1,5_92_205 qui a été aussi imprimé en acier inoxydable. L'interne TS_In_1,5_92_205 présente une perte de charge de 1,4 mbar/m et une HEPT de 0,4 m qui sont loin de nos objectifs (une perte de charge de 1 mbar/m pour $F=2 \text{ Pa}^{0,5}$ et une HEPT de 0,25 m).
- 2) L'interne TS_PA_1,5_90_238 qui se caractérise par une HEPT de 0,39 m et une perte de charge de 2,12 mbar/m pour $F = 2 \text{ Pa}^{0,5}$. Ces deux valeurs restent loin des objectifs visés.
- 3) L'interne TS_PA_1,5_89_281 qui est proche en HEPT mais loin en terme de perte de charge et de vitesse à l'engorgement par rapport à l'objectif. Cet interne présente une efficacité de transfert de matière proche de la valeur visée (HEPT = 0,3 m). Cependant, en terme de capacité, le TS_PA_1,5_89_281 a une vitesse à l'engorgement de 2,2 $\text{Pa}^{0,5}$, avec un écart de 31% avec la valeur visée (3,2 $\text{Pa}^{0,5}$) et une perte de charge d'environ 2,6 mbar/m, avec un écart de 62% avec la valeur cible (1 mbar/m pour un débit liquide de $20 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$ et un F de 2 $\text{Pa}^{0,5}$).

Chapitre IV : Performances des internes hélicoïdaux dans un réacteur oscillatoire continu

Ce chapitre est dédié à la comparaison des performances de mélange de différentes configurations de rubans hélicoïdaux réalisées par la fabrication additive et utilisées dans des réacteurs oscillatoires continus. Pour cela, un plan d'expériences est proposé pour présenter les géométries des structures adoptées dans l'étude ainsi que les essais expérimentaux réalisés sous diverses conditions opératoires. Les résultats de ces essais sont ensuite présentés et analysés. Finalement, une étude préliminaire de caractérisation des performances est menée pour dégager des tendances et évaluer la qualité du mélange dans les différents réacteurs.

1. Introduction

Le réacteur oscillatoire continu (*Continuous Oscillatory Baffled Reactor* ou COBR) est un type particulier de réacteur tubulaire utilisé en génie des procédés pour des applications en réaction et/ou mélange. Dans ce réacteur, un mouvement oscillatoire est associé à l'écoulement principal afin de provoquer des pulsations dans le milieu réactionnel. L'interaction des pulsations avec les internes du tube induit une bonne qualité de mélange et des longs temps de séjour, puisque le mélange dans le COBR devient indépendant du débit net (Avila et al., 2021).

Comme énoncé dans le chapitre I (2.2), il existe plusieurs types de réacteurs COBR, définis par des paramètres spécifiques liés à leur géométrie d'internes et leur conception (chapitre I, Figure I.26), par exemple, les réacteurs à couronnes ou chicanes et les réacteurs avec les rubans ou les fils hélicoïdaux. Les principaux paramètres géométriques des COBR (basés sur la géométrie d'un réacteur conventionnel à couronnes) sont les suivants (Figure IV.1):

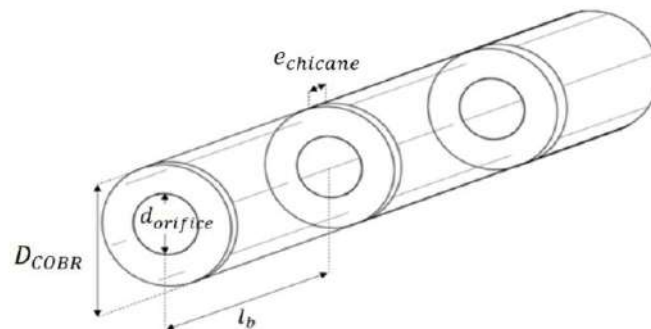


Figure IV.1: Les caractéristiques géométriques d'un réacteur à couronnes ou chicanes

1. *Diamètre du tube (D_{COBR})* : le choix du diamètre du tube dépend souvent de l'application et des débits de production visés. Il varie généralement entre 15 et 150 mm. Au niveau industriel, le diamètre du tube peut arriver jusqu'à 800 mm.
2. *Espacement des chicanes (l_b)* : il influence la forme et la longueur des tourbillons générés sous une amplitude de pulsation spécifique. Un espacement optimal doit assurer un développement complet et efficace des vortex entre deux chicanes (Ni et al., 1998). Un espacement de $1,5D_{COBR}$ est généralement fixé pour les réacteurs à couronnes (Brunold et al., 1989). Ni et al. (1998) ont aussi proposé un espacement de $2D_{COBR}$ afin de

minimiser le temps de mélange dans un réacteur conventionnel discontinu. En effet, la génération des tourbillons est limitée dans le cas où la distance entre deux chicanes est trop petite. Par conséquent, des faibles coefficients de transfert de masse sont obtenus et une réduction du mouvement radial est observée. En revanche, dans le cas où les chicanes sont trop éloignées, les vortex générés ne peuvent pas couvrir efficacement l'ensemble de la région inter-chicanes. Dans ce cas, des zones stagnantes apparaissent où l'effet des instabilités hydrodynamiques est quasiment négligeable (Ni et Gao, 1996). L'espacement des chicanes est un paramètre géométrique important pour la conception des COBR à couronnes. Pour d'autres types de géométrie, ce paramètre n'est pas pertinent ; les réacteurs avec un fil ou ruban hélicoïdal sont caractérisés par le pas. Comme vu dans le chapitre I (2.2), le rapport amplitude/pas doit être toujours compris entre 0,2 et 0,6 pour atteindre l'écoulement piston (Phan et Harvey, 2011).

3. *Épaisseur des chicanes ($e_{chicane}$)* : l'utilisation des chicanes minces favorise la génération des vortex et améliore le mélange (Ni et al., 1998). Avec une épaisseur élevée, les chicanes ont tendance à déformer les vortex générés. Toutefois, la tenue mécanique exige une valeur minimale d'épaisseur.
4. *Diamètre de l'orifice ($d_{orifice}$)* : compris entre $0,45D_{COBR}$ et $0,5D_{COBR}$ (Phan et Harvey, 2011, Ni et al., 1998).

Dans le cadre de nos travaux, nous nous intéresserons plus particulièrement aux COBR équipés de rubans hélicoïdaux. L'étude présentée dans ce chapitre vient compléter les travaux et les simulations numériques de Mazubert (2014) qui ont mis en évidence les avantages des structures hélicoïdales par rapport à d'autres géométries d'internes. Les rubans hélicoïdaux garantissent (1) un meilleur écoulement piston grâce aux interactions du mouvement oscillatoire avec la structure hélicoïdale, (2) la génération des tourbillons supplémentaires le long du tube, et (3) le mélange radial (détail en chapitre I, 2.2).

2. Matériel et méthodes

2.1 Dispositif expérimental

Le pilote expérimental utilisé pour effectuer les expériences de caractérisation du mélange est un réacteur oscillatoire continu de diamètre (D_{COBR}) 15 mm et de longueur (L_{COBR}) 700 mm (Figure IV.2 et Figure B.3 en Annexe B). Ce réacteur à alimentation continue appartient à la famille COBR. Il s'agit d'un tube en verre garni d'un interne hélicoïdal imprimé en 3D avec une résine (translucide) de type PC.

Afin de caractériser expérimentalement le mélange dans ce réacteur, une solution de traceur est injectée de façon continue dans le courant du flux principal à l'entrée du tube. Le choix du traceur a une grande importance ; il doit avoir les mêmes propriétés que le fluide procédé. Pour nos expériences, le système utilisé est l'eau/glycérol (glycérol > 99%, masse volumique de 1,25 g/mL). Le traceur choisi est une solution de bleu de méthylène. Afin de ne pas avoir une différence de viscosité entre le traceur et le fluide principal, le traceur est préparé en diluant le bleu de méthylène (masse volumique de 1 g/mL, masse molaire de 319 g/mol) à une concentration de $7,5 \cdot 10^{-4}$ g/mL dans la solution eau/glycérol. Des solutions de différentes concentrations et de différentes viscosités ont été préparées ($x_{\text{gly}} = 0,175$ et $x_{\text{gly}} = 0,325$) en se basant sur un plan d'expériences (voir partie 2.2). Le Tableau IV.1 montre les propriétés physico-chimiques des deux mélanges adoptés à une température de 20°C et sous une pression atmosphérique (Sheely, 1932) (Gregory, 1991).

Tableau IV.1: Comparaison entre les deux mélanges eau/glycérol ($x_{\text{gly}} = 0,175$ et $x_{\text{gly}} = 0,325$)

	Eau/glycérol	
	0,175	0,325
Fraction molaire - glycérol	0,175	0,325
Composition (wt%)	52	71
Masse Volumique (kg/m^3)	1033,9	1023,2
Viscosité dynamique (Pa.s)	0,00676	0,02517

Comme le montre la Figure IV.2, le réacteur (R-01) est parcouru par un écoulement monophasique liquide (mélange eau/glycérol) alimenté à partir d'un réservoir FV-01 par une pompe d'alimentation primaire P-01. La solution de traceur (mélange eau/glycérol et bleu de méthylène) est injectée via un tube en T de 1,5 mm de diamètre. Cette solution est alimentée à partir d'un deuxième réservoir FV-02 par une pompe d'alimentation secondaire P-02. Les débits d'alimentation primaire et secondaire peuvent être réglés manuellement ; ils sont compris entre 0 et 20 kg/h et entre 0 et 3,5 kg/h, respectivement. Les oscillations sont imposées dans le tube à l'aide d'une pompe de pulsation P-03. La fréquence et l'amplitude des pulsations varient entre 0,25 et 1,75 Hz et entre 0 et 80 mm, respectivement.

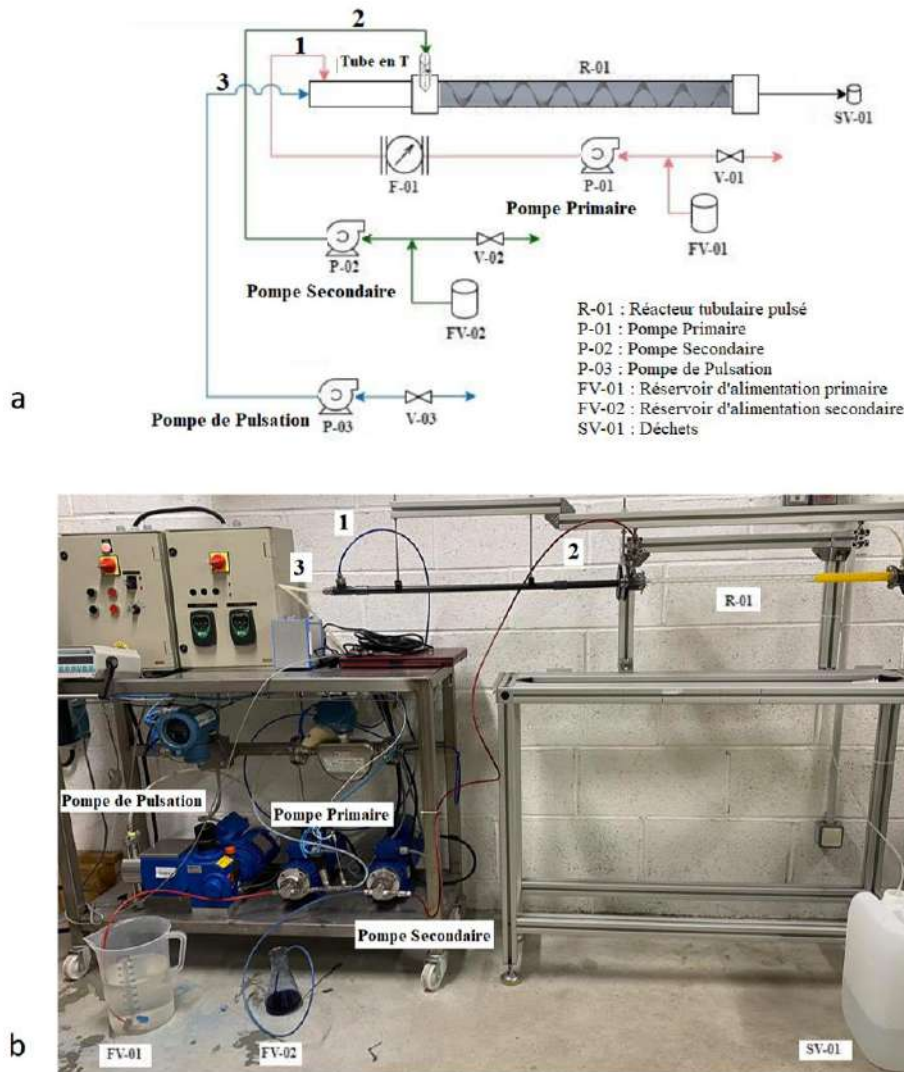


Figure IV.2: (a) : Schéma descriptif de l'installation expérimentale, (b) : Photo du pilote

Une caméra rapide (*EoSens CL Super Sensitive*) d'une résolution de 1280x1024 pixels est utilisée pour réaliser des photos de l'écoulement dans le réacteur oscillatoire continu (Figure B.3 en Annexe B). Cette caméra est capable de prendre 500 images par seconde (fps) en niveau de gris, sur 8 bits. Un logiciel d'acquisition (*StreamPix 5*) est relié à la caméra pour contrôler la prise d'images et les enregistrer. Les 500 images obtenues sont analysées via le logiciel Matlab (voir détail en partie 2.4).

Les photos de l'écoulement réalisées au moyen de la caméra rapide sont prises à l'entrée du tube pour tous les essais présentés précédemment (à proximité du tube en T utilisé pour l'injection de la solution de traceur) 3 min après la première injection pour s'assurer que l'écoulement est bien établi. Une boîte de visualisation de longueur 15 cm est ajoutée au début du réacteur pour diminuer les distorsions optiques (Figure IV.3.a). Cette boîte a été remplie avec de l'eau. En cas où la solution du traceur traversant le tube ne se mélange pas ou très peu avec le flux d'alimentation primaire au début des 17 cm du réacteur, la boîte de visualisation et la caméra sont alors déplacées pour reprendre de nouvelles photos au milieu (ou parfois à la sortie) du tube (Figure IV.3.b et IV.3.c).

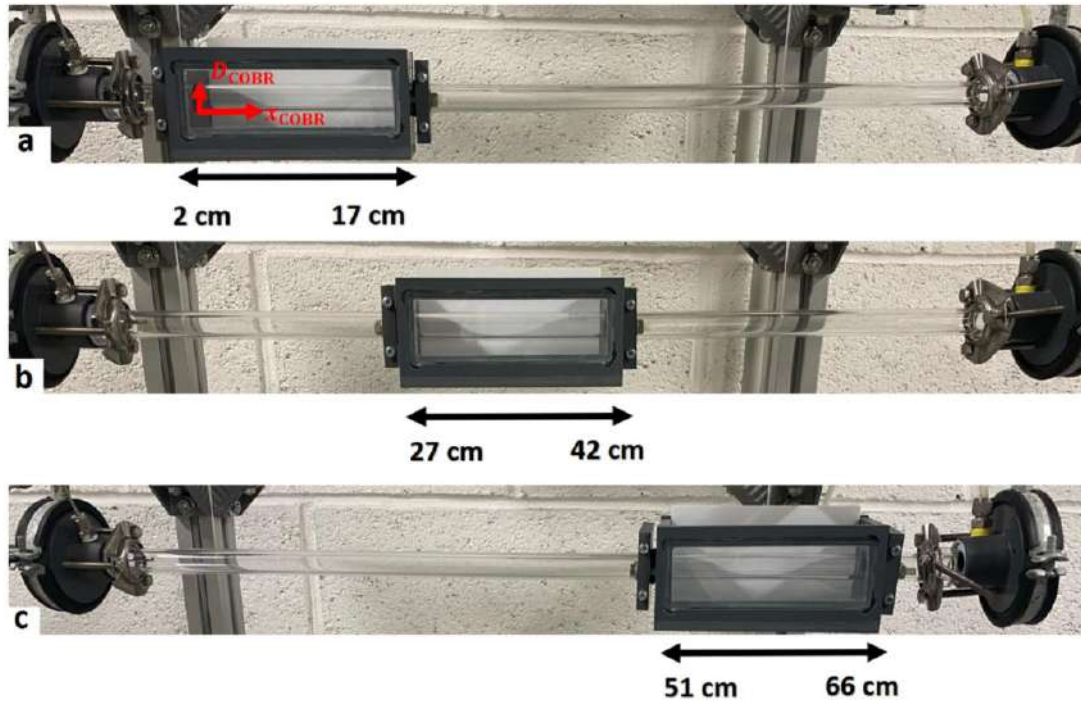


Figure IV.3: Photos de la boîte de visualisation avec D_{COBR} le diamètre du tube et x_{COBR} la position axiale dans le tube

2.2 Plan d'expériences

L'objectif d'un plan d'expériences est d'obtenir le maximum de renseignements sur une étude scientifique pour un minimum nombre d'essais. Avec un plan d'expériences, la relation qui existe entre une réponse et plusieurs facteurs indépendants entre eux est recherché. La réponse est une grandeur d'intérêt mesurée à chaque expérience. Cette réponse dépend de certaines variables indépendantes, nommées facteurs (Goupy, 2006). Chaque facteur est limité entre une borne inférieure et une borne supérieure (niveau bas et haut, respectivement).

Dans notre étude, la grandeur d'intérêt ou la réponse visée est le pourcentage du mélange dans le COBR. Ce pourcentage sera déterminé à travers un traitement numérique des images d'un réacteur oscillatoire continu parcouru par un système d'eau/glycérol avec une solution de traceur (bleu de méthylène et eau/glycérol) injectée de façon continue à l'entrée du tube. Les facteurs qui affectent le mélange dans le réacteur sont les suivants :

1. Les propriétés du système utilisé (fraction molaire ou viscosité et masse volumique). Dans notre cas, le COBR est alimenté par un mélange d'eau/glycérol dont les propriétés physico-chimiques ont été listées en Tableau IV.1.
2. Les caractéristiques géométriques du ruban hélicoïdal introduit dans le réacteur (largeur, pas, $d_{hélice}$, Figure IV.4). L'épaisseur de l'interne n'a pas été considérée comme une variable, puisqu'elle a une valeur constante pour toutes les configurations imprimées ($e_{hélice} = 1 \text{ mm}$).

3. Les caractéristiques du flux oscillatoire imposé dans le tube (la fréquence et l'amplitude des pulsations) et le débit net. Dans notre cas, le débit net est maintenu constant.

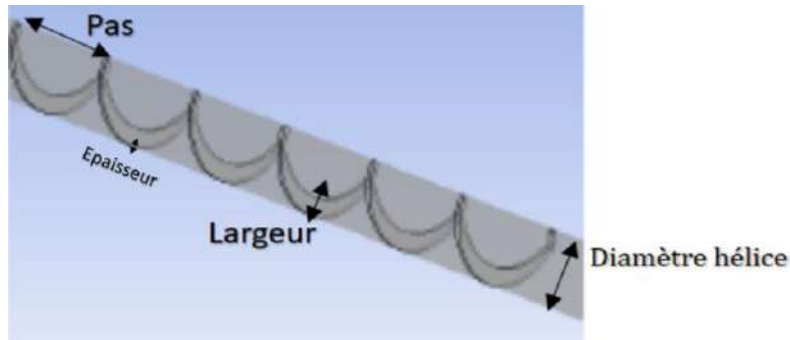


Figure IV.4: Les caractéristiques géométriques d'un ruban hélicoïdal

Tableau IV.2 présente les facteurs étudiés pour la caractérisation du mélange dans le COBR.

Tableau IV.2: Les facteurs étudiés pour la caractérisation du mélange dans un COBR

Caractéristiques	Mélange	Interne			Pulsation	
	Fraction molaire glycérol (x_{gly})	$d_{hélice}$ (mm)	Largeur (mm)	Pas (mm)	x_o (mm)	f (Hz)
Niveau bas	0,1	3,75	1	7	2	0,75
Niveau haut	0,4	14,5	3,75	26	16	1,75

Six facteurs à deux niveaux ont permis de construire le plan factoriel :

- **$d_{hélice}$** : le diamètre maximal de l'interne est fixé à 14,5 mm, puisque le diamètre du tube D_{COBR} est égal à 15 mm.
- **Largeur** : la largeur minimale des rubans est fixée à 1 mm en raison de contraintes de réalisation technique. La largeur maximale est fixée à 3,75 mm.
- **Pas** : le pas varie entre 7 et 26 mm. Ces valeurs sont choisies en se basant sur un espacement classique de deux chicanes dans un réacteur conventionnel à couronnes (voir introduction).
- **Fréquence et amplitude** : la fréquence et l'amplitude des pulsations sont comprises respectivement entre 0,75 et 1,75 Hz et 2 et 16 mm. Ces deux gammes de valeurs sont liées à la pompe de pulsation.
- **Fraction molaire du glycérol** : x_{gly} est compris entre 0,1 et 0,4. Cette gamme est liée à la pompe d'alimentation primaire.
- **Epaisseur** : l'épaisseur des rubans est fixée à 1 mm afin d'avoir des internes assez rigides.

Le nombre d'expériences à réaliser est déterminé en se basant sur le nombre de facteurs étudiés. Normalement, le nombre d'expériences à réaliser est égal à 2^K , avec K le nombre de facteurs étudiés pour deux niveaux (Goupy, 2006). Dans ce cas, il y aura 2^6 essais

expérimentaux (64 expériences en total). Toutefois, plusieurs modifications ont été apportées à ce plan au cours du travail.

Deux configurations proposées par le plan d'expériences ont été écartées à cause des contraintes géométriques. Au moment de l'impression, on a constaté que les configurations présentant un petit diamètre ($d_{\text{hélice}} = 3,75 \text{ mm}$) et une fine largeur (1 mm) ne sont pas suffisamment rigides pour être introduites dans le réacteur et garantir la stabilité des rubans. D'autres essais expérimentaux proposés aussi par le plan d'expériences n'ont pas été effectués pour deux raisons, un faible Reynolds oscillatoire (inférieur à 25) ou un ψ_v (rapport du nombre de Reynolds oscillatoire par le nombre de Reynolds net) inférieur à 2 (chapitre I, partie 2.2.1). De plus, des essais supplémentaires ont été ajoutés pour quelques internes pour pouvoir comparer des structures différentes sous des conditions opératoires identiques. Le plan d'expériences a aussi été complété par des expériences pour une nouvelle structure "hélice variable" (interne V), celle-ci va être présentée dans la partie suivante. Cette structure n'a pas été proposée par le plan original, puisqu'elle est caractérisée par un diamètre d'interne variable.

Finalement 78 expériences sont effectuées avec 13 rubans hélicoïdaux. Le Tableau H.1 en Annexe H montre les essais réalisés sous les différentes conditions opératoires énumérées en-dessous :

1. $x_{\text{gly}} = 0,175$, $x_o = 5,5 \text{ mm}$ et $f = 1 \text{ Hz}$
2. $x_{\text{gly}} = 0,175$, $x_o = 5,5 \text{ mm}$ et $f = 1,5 \text{ Hz}$
3. $x_{\text{gly}} = 0,175$, $x_o = 12,5 \text{ mm}$ et $f = 1 \text{ Hz}$
4. $x_{\text{gly}} = 0,175$, $x_o = 12,5 \text{ mm}$ et $f = 1,5 \text{ Hz}$
5. $x_{\text{gly}} = 0,325$, $x_o = 12,5 \text{ mm}$ et $f = 1 \text{ Hz}$
6. $x_{\text{gly}} = 0,325$, $x_o = 12,5 \text{ mm}$ et $f = 1,5 \text{ Hz}$

Pour les sections suivantes, une nomenclature est associée aux différents rubans hélicoïdaux : X-#, où X correspond à l'interne testé sous la condition opératoire numéro #.

2.3 Présentation de la géométrie des internes hélicoïdaux

Les structures développées sont basées sur la géométrie d'un ruban hélicoïdal. Différentes configurations ont été créées en modifiant plusieurs paramètres géométriques comme le diamètre de l'interne " $d_{\text{hélice}}$ ", le pas, et la largeur du ruban (Figure IV.4). La longueur des internes est égale à 700 mm ce qui correspond à la longueur du tube disponible et l'épaisseur des rubans a une valeur constante $e_{\text{hélice}} = 1 \text{ mm}$ pour toutes les configurations.

Douze différentes configurations sont créées selon le plan d'expériences présenté précédemment. Les caractéristiques géométriques des 12 rubans hélicoïdaux sont affichées dans le Tableau IV.3 et les dessins en 3D (avec des tubes de diamètre 15 mm) sont illustrés en Figure IV.5.

Tableau IV.3: Les paramètres géométriques des rubans hélicoïdaux

Interne	Largeur (mm)	Pas (mm)	$d_{\text{hélice}}$ (mm)
A	1,68	11,75	6,56
B	1,68	11,75	12,19
C	3,06	11,75	6,56
D	3,06	11,75	12,19
E	1,68	21,25	6,56
F	1,68	21,25	12,19
H	3,06	21,25	12,19
I	2,37	16,5	9,38
M	3,75	16,5	9,38
N	2,37	7	9,38
O	2,37	26	9,38
R	3,75	26	14,5

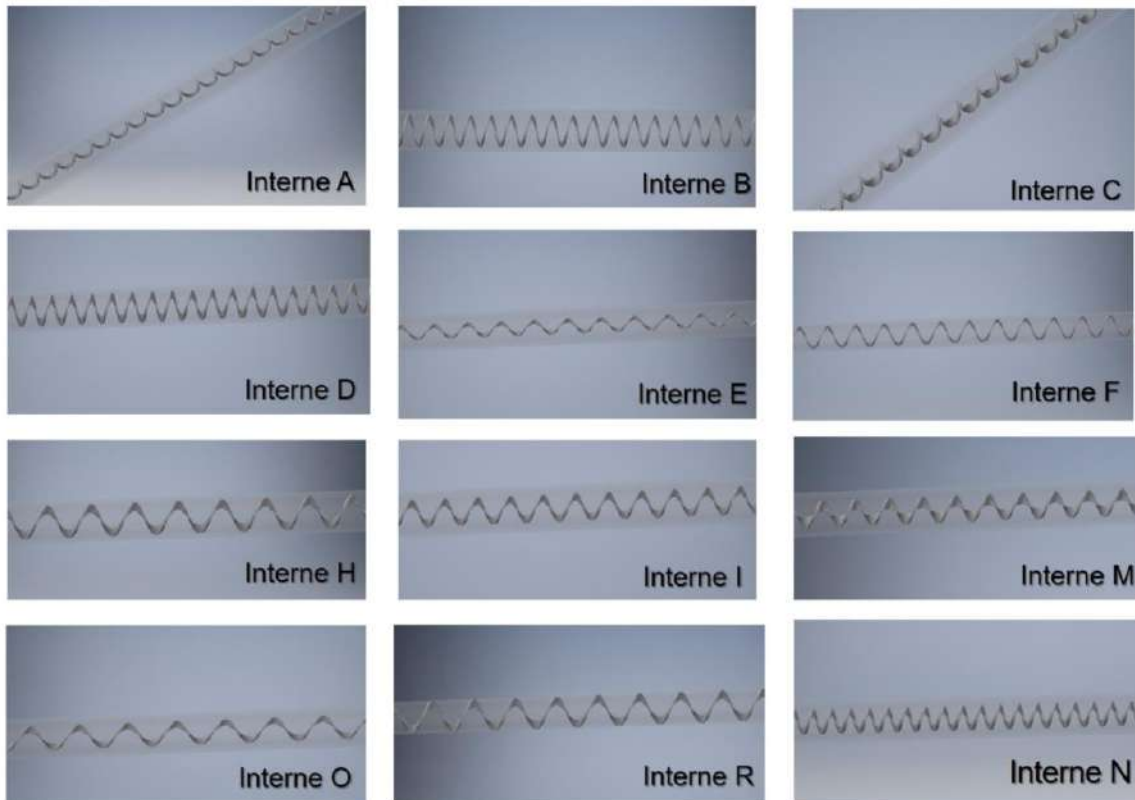


Figure IV.5: Dessins en 3D des différents rubans hélicoïdaux adoptés dans nos études

En se basant sur ces géométries, une nouvelle structure, appelée "hélice variable" ou interne V, est créée. Ce nouveau ruban hélicoïdal possède trois différents diamètres ; $d_{\text{hélice}}$ varie entre 14,5 mm, 6,5 mm, et 10,75 mm. Cette structure est caractérisée aussi par une largeur de 1,68 mm, une épaisseur de 1 mm, et un pas de 26 mm. La Figure IV.6 montre un dessin en 2D et en 3D de l'hélice variable formée d'une suite successive et symétrique de

diamètre traduit par : "GG i p i GG", avec G le grand diamètre (14,5 mm), i le diamètre intermédiaire (10,75 mm), et p le petit diamètre (6,5 mm).

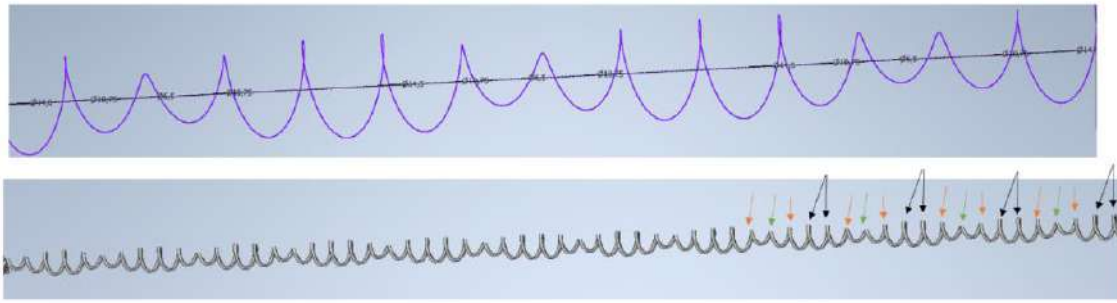


Figure IV.6 : Dessin en 2D et en 3D de l'hélice variable (interne V).
Flèche noire : G : $d_{\text{hélice}} = 14,5 \text{ mm}$, flèche orange : i : $d_{\text{hélice}} = 10,75 \text{ mm}$, , flèche verte : p : $d_{\text{hélice}} = 6,5 \text{ mm}$

Afin de fixer les internes dans le tube, des anneaux de diamètre 14,5 mm et d'épaisseur 5 mm avec un bras d'épaisseur 2 mm sont ajoutés ; ce sont des supports supplémentaires. Ces supports sont répartis le long de l'interne (chaque 75 mm environ) et permettent de centrer les rubans dans le tube (Figure IV.7).

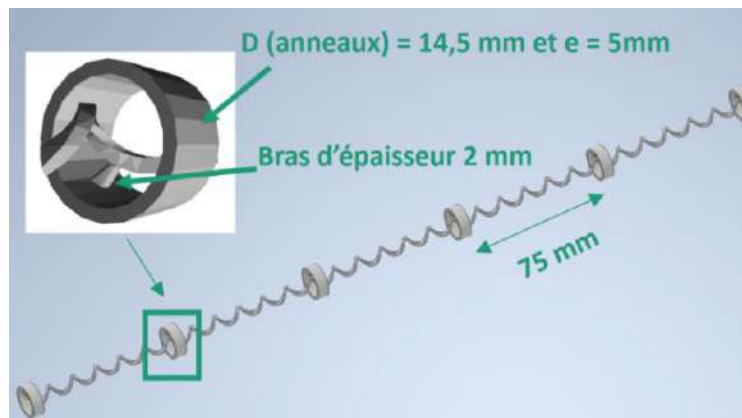


Figure IV.7 : Dessin en 3D des supports supplémentaires

Les rubans hélicoïdaux (13 internes au total – hélice variable incluse) sont dessinés en trois dimensions avec le logiciel Autodesk Inventor et ensuite imprimés en 3D (suivant la même méthodologie appliquée aux garnissages en distillation, Chapitre II, 2). Les contraintes de translucidité et de rigidité des matériaux ont amené l'utilisation du procédé de stéréolithographie (SLA) pour fabriquer les internes hélicoïdaux avec une résine (translucide) de type PC. La Figure IV.8 illustre cinq différents internes imprimés en 3D. Ces internes sont introduits dans un tube en verre de diamètre 15 mm et de longueur 700 mm (partie 2.1).

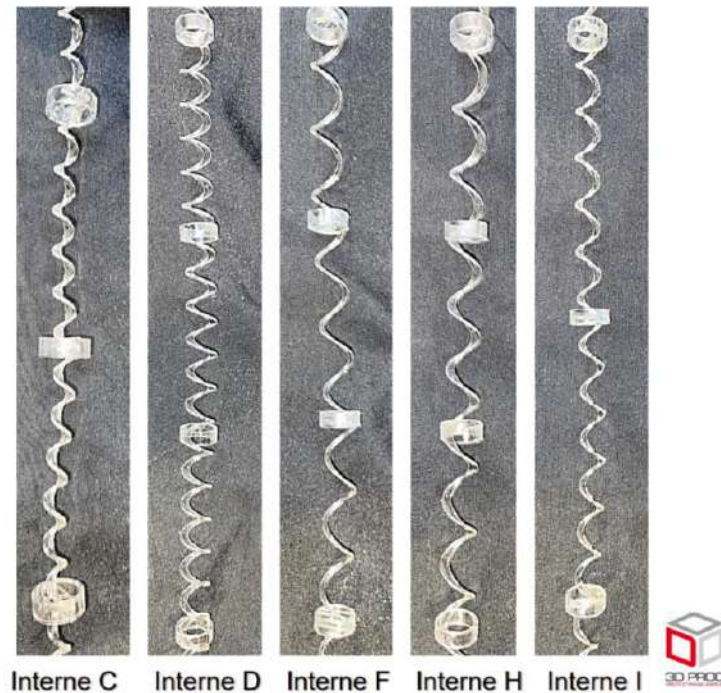


Figure IV.8: Photo de cinq rubans hélicoïdaux imprimés en 3D par 3D PROD

2.4 Analyse et interprétation d'images

2.4.1 Présentation des approches

Comme vu précédemment, une caméra rapide est utilisée pour réaliser des photos du réacteur oscillatoire continu en verre avec les internes hélicoïdaux imprimés en 3D. Dans ce réacteur, une solution de traceur (bleu de méthylène et eau/glycérol) est injectée de façon continue dans le courant du fluide (eau/glycérol) avec un flux oscillatoire imposé à l'entrée du tube. La caméra (*EoSens CL Super Sensitive*) prend 500 images de 8 bits en niveau de gris. Un traitement numérique des images prises est ensuite effectué.

Pour pouvoir réaliser les traitements et les analyses d'images, les images doivent être numérisées. Par définition, une image numérique est une image formée d'un nombre de points nommés pixels (*picture elements*). Ces éléments sont regroupés sous forme d'un tableau en 2D en hauteur et en largeur. La taille d'une image numérique, appelée aussi résolution, est alors déterminée en multipliant la largeur par la hauteur (en pixels). Chaque pixel est caractérisé par une valeur représentant une profondeur de couleur (ou nombre de bits par pixel). Une image de 8 bits par pixel comporte 256 couleurs allant de 0 (noir) à 255 (blanc).

Une méthodologie d'analyse et d'interprétation d'images est adoptée et est présentée en Figure IV.9. Elle est constituée de deux parties :

1. Description structurelle pour obtenir le contenu d'une image (analyse d'images) :
 - a. les opérations arithmétiques pour générer une nouvelle image,
 - b. la segmentation de cette image en se basant sur une classification des pixels.

2. Description sémantique en relation avec les objectifs (interprétation d'images) :
 - a. le comptage des pixels pour sélectionner les internes performants,
 - b. une évaluation de la qualité du mélange sur les internes choisis pour dégager des tendances.

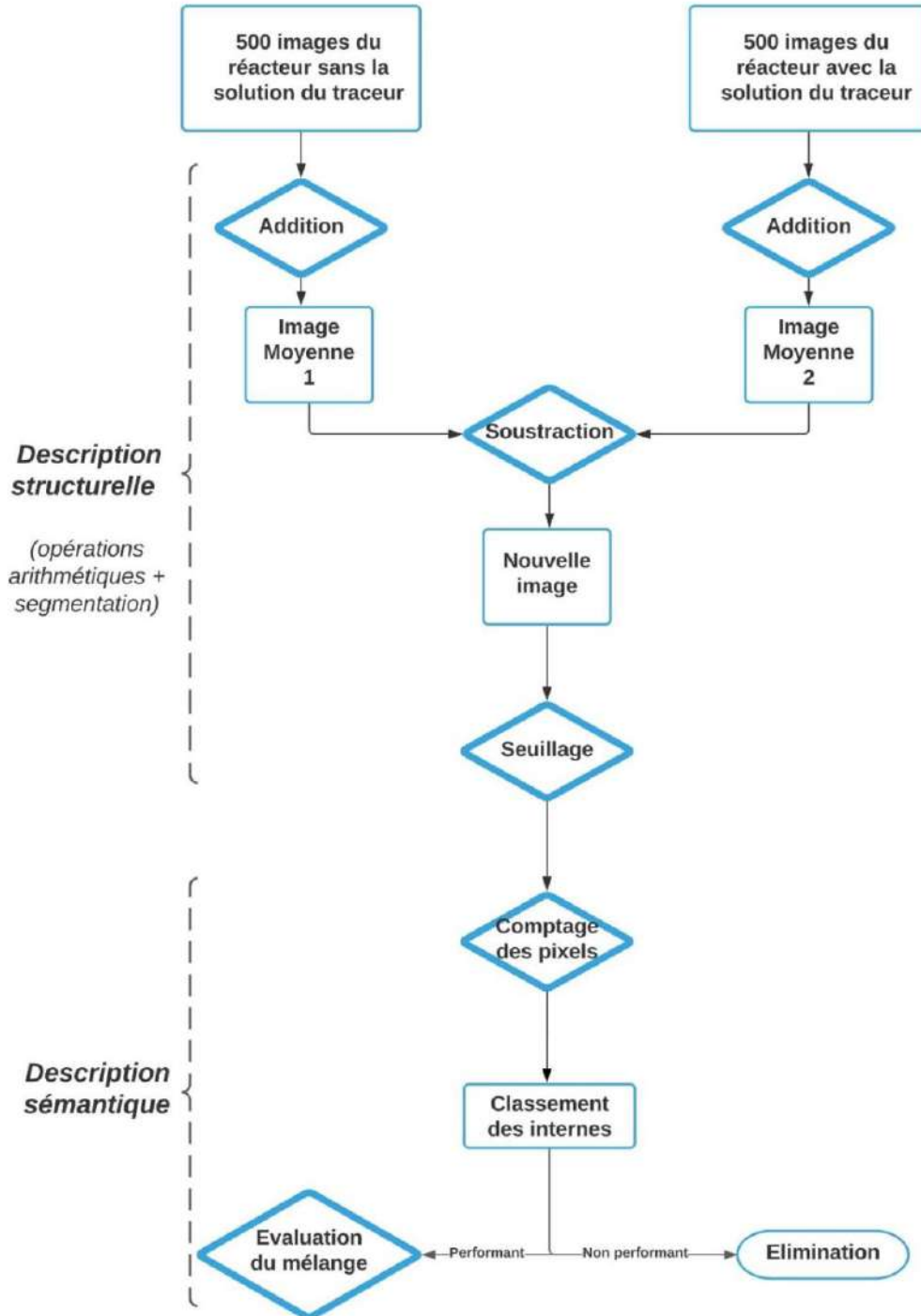


Figure IV.9: La méthodologie d'analyse et d'interprétation d'images appliquée dans l'étude

2.4.2 Analyse des images

2.4.2.1 Les opérations arithmétiques

La première étape d'analyse d'images comporte deux opérations différentes, l'addition et la soustraction des images. L'addition consiste à fusionner 500 images en une seule image. L'image moyenne est obtenue en faisant la moyenne de toutes les images :

$$\text{Image moyenne} = \frac{\sum_0^i \text{images}}{\text{nombre d'images}} \quad (\text{IV.2})$$

Deux additions sont effectuées dans cette étude afin d'obtenir deux images moyennes différentes, sans et avec la solution du traceur (Figure IV.9).

Une soustraction est ensuite réalisée pour soustraire l'image du fond. L'image finale est alors obtenue en soustrayant de l'image avec la solution du traceur l'image sans solution. Un exemple est illustré en Figure IV.10.

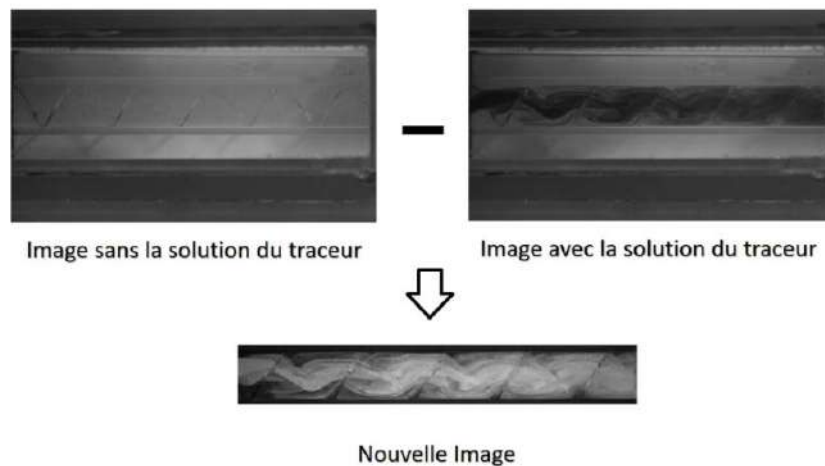


Figure IV.10: Exemple d'une soustraction de deux images

2.4.2.2 Le seuillage

Le seuillage d'image est la deuxième étape ; c'est la technique de segmentation la plus simple. Elle consiste à classer les pixels selon des critères définis par l'opérateur et à leur assigner des nouvelles valeurs en se basant sur les différentes intensités de couleurs. Cette technique permet généralement d'obtenir une image binaire (noir et blanc) à partir d'une valeur seuil (S) préfixée.

Dans notre cas, le seuillage est utilisé pour transformer l'image des opérations arithmétiques en une image ne contenant que 3 valeurs de pixels. Une valeur seuil de $S = 50$ (avec un écart $\Delta I = 15\%$) est fixée pour une image numérique en 256 niveaux de gris allant de 0 (noir) à 255 (blanc). La valeur seuil ($S = 50$) est obtenue à travers un traitement d'image sous Matlab en se basant sur la distribution des pixels d'une image de référence pour un système parfaitement mélangé.

Trois niveaux de mélange différents sont alors représentés pour une image $f(x,y)$ avec (x,y) les valeurs des pixels de la ligne x et de la colonne y :

- si $S-\Delta I < f(x,y) < S+\Delta I$; couleur grise pour un système bien mélangé (à 85%)
- si $f(x,y) < S-\Delta I$; couleur blanche pour un système non-mélangé
- si $f(x,y) > S+\Delta I$; couleur noire pour un système sur-concentré

Un exemple de seuillage est illustré en Figure IV.11 pour l'interne R sous nos différentes conditions opératoires. Le code de Matlab permettant d'effectuer les opérations arithmétiques ainsi que le seuillage d'images est affiché en Annexe I (Figure I.1).

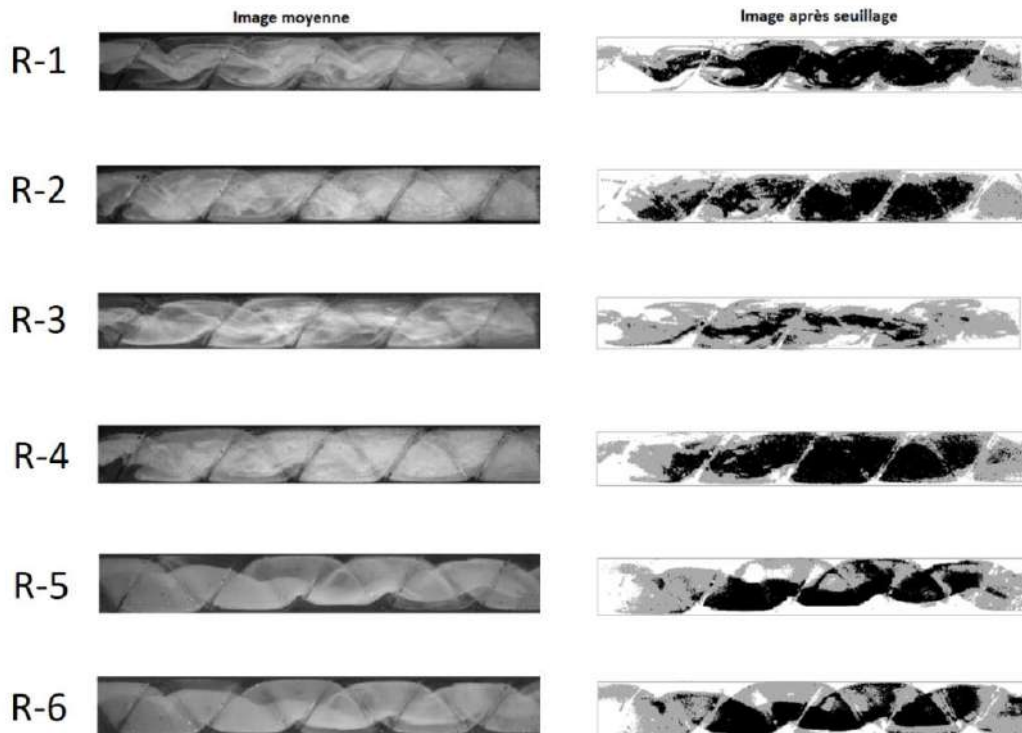


Figure IV.11: Les images obtenues après seuillage pour l'interne R

2.4.3 Interprétation des images

2.4.3.1 Identification des zones de mélange

Une fois les images numérisées en noir, blanc, et gris obtenues, un comptage des pixels est réalisé pour chaque image (Figure IV.9). Ce comptage se fait pixel par pixel à travers un code créé sous Matlab. Un pourcentage de pixels est ensuite calculé pour chaque couleur. Le calcul des pourcentages de pixels aide à déterminer l'aire relative des zones bien mélangées, non-mélangées, et sur-concentrées. Les détails de cette étape sont affichés en Figure I.2 en Annexe I.

L'image obtenue après seuillage (de longueur 15 cm, Figure IV.12.a) est divisée en 15 tranches verticales de longueur égale à 1 cm (Figure IV.12.b) afin de calculer les pourcentages de pixels de chaque partie. Les résultats sont reportés en fonction d'une distance adimensionnelle (position axiale dans le tube/diamètre du tube : $x_{\text{COBR}}/D_{\text{COBR}}$).

En se basant sur l'exemple de la Figure IV.11 (système R-1), les pourcentages des différents pixels (gris, blancs, et noirs) de l'image numérisée du système R-1 sont calculés. La Figure IV.13 montre l'évolution des trois pourcentages (à l'entrée du tube) en fonction de la position axiale dans le tube (x_{COBR}).

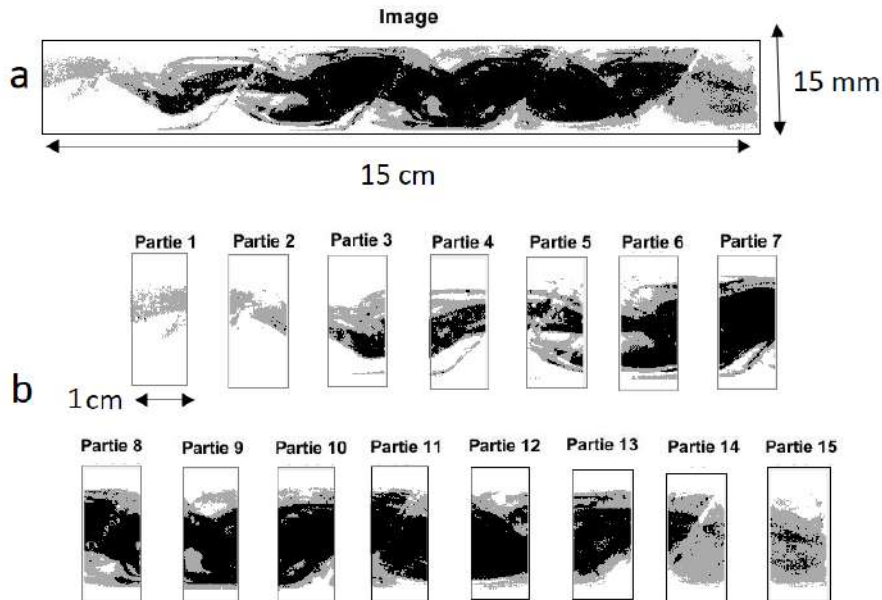


Figure IV.12: (a) : L'image de l'interne R obtenue après seuillage, (b) : la division de l'image en 15 parties

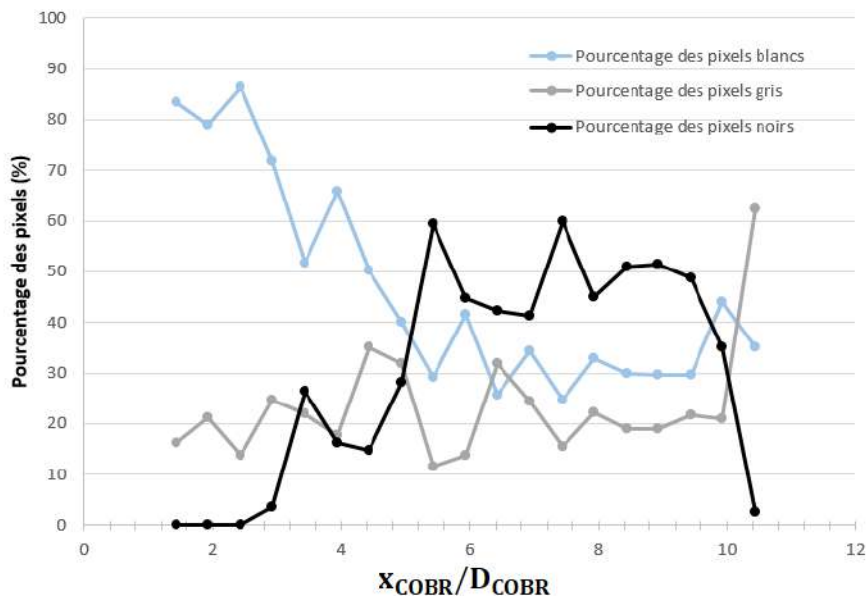


Figure IV.13: L'évolution des pourcentages des pixels pour le système R-1

Le calcul de pourcentage de pixels tout au long du réacteur est appliqué sur les 78 essais effectués expérimentalement afin d'identifier la qualité du mélange dominante dans chaque réacteur et effectuer une première sélection des internes hélicoïdaux les plus performants. La sélection de ces internes est basée sur une évaluation des pourcentages des pixels gris, blancs, et noirs en fonction de la position axiale dans le tube.

2.4.3.2 Evaluation de la qualité du mélange

Deux pistes sont explorées pour évaluer la qualité du mélange dans le réacteur oscillatoire continu avec les différents rubans performants en se basant sur les données issues de la partie 2.4.3.1 (Figure IV.9).

2.4.3.2.1 Dispersion par rapport à une concentration parfaitement mélangée

La première piste est le calcul de la variance (σ_V) qui sert à examiner la dispersion de la concentration du traceur dans les COBR sélectionnés par rapport à une concentration parfaitement mélangée (Eq. IV.2). Pour convertir les niveaux de gris ou les pixels des images en des concentrations, cinq courbes d'étalonnage ont été établies (Figure J.2 en Annexe J). Une description simplifiée de la méthode utilisée pour établir les différentes courbes d'étalonnage est présentée en Annexe J.

Les images (avant seuillage) des internes sélectionnés sont divisées en 15 tranches verticales (de longueur égale à 1 cm comme l'exemple de la Figure IV.12). Chaque tranche verticale est fractionnée en 5 tranches horizontales. Le niveau de gris de chaque tranche est ensuite relié à une concentration en se basant sur les courbes d'étalonnage déjà établis. La variance est finalement calculée :

$$\sigma_V = \frac{\sum \left(\frac{C_n}{C_{pm}} - 1 \right)^2}{n_{th}} \quad (IV.2)$$

avec C_n la concentration de chaque tranche horizontale (C_n est obtenue à partir des courbes d'étalonnage), C_{pm} la concentration parfaitement mélangée, et n_{th} le nombre de tranches horizontales ($n_{th} = 5$).

Enfin, cette variance est représentée en fonction de la position axiale dans le tube afin d'évaluer l'écart entre la concentration du traceur dans les COBR et la concentration d'un système parfaitement mélangé. En se basant sur l'exemple de la Figure IV.11 (système R-1), une représentation de la variance en fonction de la position axiale dans le tube est illustrée en Figure IV.14.

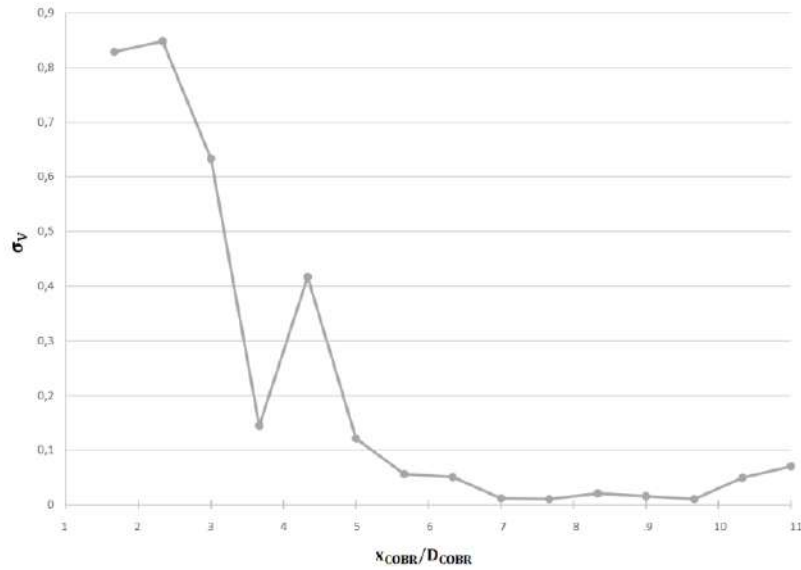


Figure IV.14: L'évolution de la variance en fonction de la position axiale dans le tube pour le système R-1

2.4.3.2.2 Détermination du pourcentage de mélange

La seconde piste explorée est le calcul du gradient de concentration radial. Puisque cette concentration est reliée au niveau de gris, ce gradient (représentée par une pente P) peut être calculée entre deux points (deux valeurs de niveau de gris) :

$$P = \frac{NG_{i+1} - NG_i}{D_{COBR_{i+1}} - D_{COBR_i}} \quad (IV.3)$$

avec NG_i le niveau de gris pour un point i ayant une position radiale D_{COBR_i} .

Pour cette étape, l'image d'un ruban hélicoïdal (avant seuillage) est divisée en 15 tranches égales (comme l'exemple de la Figure IV.12). Pour chaque tranche verticale, les valeurs du niveau de gris sont déterminées en fonction du diamètre du tube D_{COBR} .

Pour un mélange homogène dans le COBR, le profil du niveau de gris (ou de concentration) ressemble au profil illustré en Figure IV.15.a. Dans ce cas, il n'y a pas ou peu de différence entre les valeurs de niveaux de gris ou les différentes concentrations du système, et donc, des faibles gradients sont calculés. Pour un système non-mélangé (ex : la solution du traceur ne se mélange pas avec le flux d'alimentation primaire), un fort gradient est calculé, représentant ainsi une forte variation de concentration ou de niveau de gris (Figure IV.15.b).

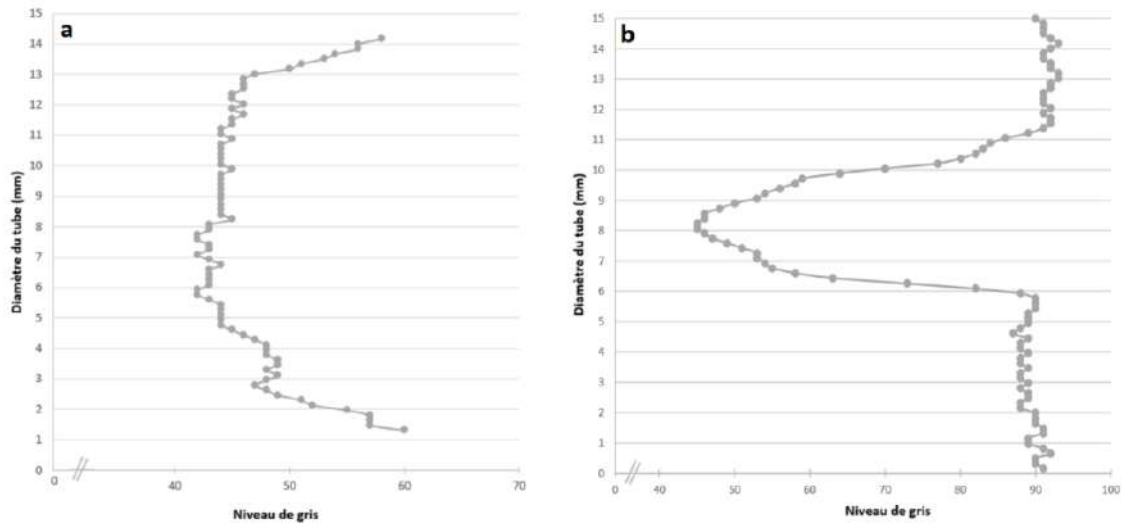


Figure IV.15: L'évolution du niveau de gris pour un : (a) : système homogène et bien mélangé, (b) : système non-mélangé

La variation du gradient de concentration en fonction du diamètre du tube (pour une seule tranche) permet de déterminer une largeur de plateau. Pour un système homogène, les gradients calculés entre deux valeurs de niveau de gris sont faibles, la largeur du plateau sera alors proche du diamètre du tube (Figure IV.15.a). Un autre exemple est illustré en Figure IV.16 où la largeur du plateau est égale à 12,5 mm. La procédure est répétée pour les 15 tranches verticales.

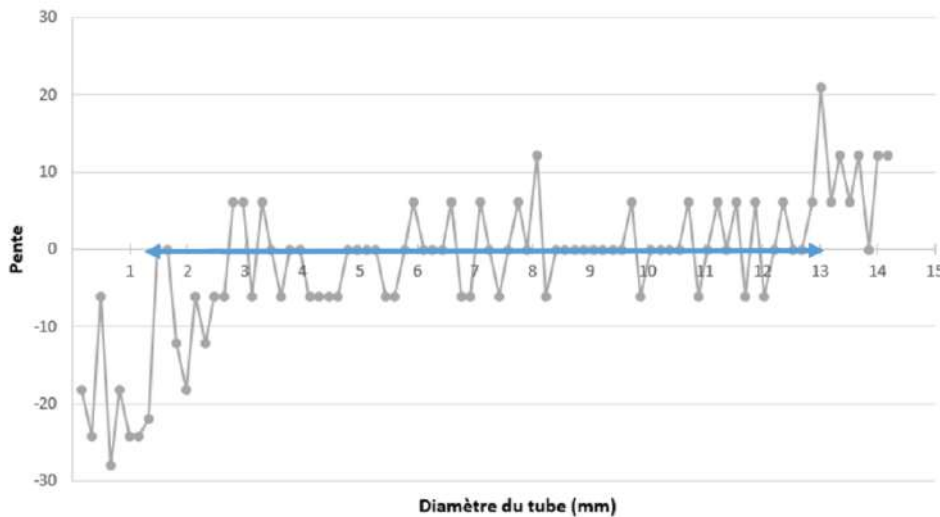


Figure IV.16: L'évolution de la pente en fonction du diamètre du tube (pour une seule partie verticale) pour le système R-1. La flèche bleue représente la largeur du plateau

Un pourcentage de mélange est ensuite déterminé à partir de la largeur du plateau afin de caractériser le mélange dans les COBR. Ce pourcentage (Eq. IV.4) est égal à la largeur du plateau (en mm) divisée par le diamètre du tube (15 mm). Plus le pourcentage est élevé, plus

le plateau est large, plus le système est mélangé (large plateau = pas ou peu de différence entre les valeurs de niveaux de gris ou les différentes concentrations du système).

$$\% \text{ mélange} = \frac{\text{Largeur du plateau}}{D_{\text{COBR}}} \quad (\text{IV.4})$$

La largeur du plateau correspond à la longueur de la zone où les valeurs de la pente sont comprises entre -20 et 20 (Figure IV.16). Cette gamme est fixée en se basant sur l'évolution de la pente en fonction du diamètre du tube pour une image de référence d'un système parfaitement mélangé.

3. Résultats

Dans cette partie, les résultats des expériences obtenues par le plan d'expériences et listées en Tableau H.1 en Annexe H sont analysés. Les images sont prises dans la zone la plus proche de l'entrée du tube (voir partie 2.1).

3.1 Analyse qualitative

Plusieurs facteurs jouent un rôle important dans la caractérisation du mélange dans les réacteurs oscillatoires continus, comme les paramètres géométriques (ex : la largeur, le diamètre, et le pas de l'interne) et les conditions opératoires du système choisi.

3.1.1 Influence de la géométrie

En se basant sur les caractéristiques des différents rubans hélicoïdaux et sur les images obtenues après seuillage, l'influence des différents paramètres géométriques est analysée dans cette partie. Pour cela, les rubans hélicoïdaux présentant des caractéristiques géométriques identiques sont comparés.

Le Tableau IV.4 montre une classification des 12 internes imprimés selon les critères géométriques.

- Avec :
- groupe *a* : les internes présentant une largeur et un pas identiques,
 - groupe *b* : les internes présentant un diamètre et un pas identiques,
 - groupe *c* : les internes présentant un diamètre et une largeur identiques.

Tableau IV.4: Une classification des internes selon les caractéristiques géométriques

Groupe	Caractéristiques	Interne
a	Largeur et pas identiques (1,68 mm et 11,75 mm, respectivement)	A
		B
	Largeur et pas identiques (3,06 mm et 11,75 mm, respectivement)	C
		D
	Largeur et pas identiques (1,68 mm et 21,25 mm, respectivement)	E
		F
	Largeur quasi-identique et pas identique (26 mm)	O
		R
b	Diamètre d'interne et pas identiques (6,56 mm et 11,75 mm, respectivement)	A
		C
	Diamètre d'interne et pas identiques (12,19 mm et 11,75 mm, respectivement)	B
		D
	Diamètre d'interne et pas identiques (12,19 mm et 21,25 mm, respectivement)	F
		H
Diamètre d'interne et pas identiques (9,38 mm et 16,5 mm, respectivement)	I	
	M	
c	Diamètre d'interne et largeur identiques (6,56 mm et 1,68 mm, respectivement)	A
		E
	Diamètre d'interne et largeur identiques (12,19 mm et 1,68 mm, respectivement)	B
		F
	Diamètre d'interne et largeur identiques (9,38 mm et 2,37 mm, respectivement)	I
		N
Diamètre d'interne et largeur identiques (12,19 mm et 3,06 mm, respectivement)	O	
	H	
		D

3.1.1.1 Influence du diamètre du ruban

Dans ce paragraphe, les images obtenues après seuillage des différents rubans présentant la même largeur et le même pas (groupe a, Tableau IV.4) sont comparées.

Les internes E et F se caractérisent par une largeur de 1,68 mm et un pas de 21,25 mm. Les images de ces deux rubans montrent que le système E-3 présente des zones sur-concentrées alors que le système F-3 est bien mélangé (Figure IV.17). Cela est dû au fait que l'interne F se caractérise par un diamètre plus important ($d_{\text{hélice}} = 12,19 \text{ mm}$).

En comparant l'image de l'interne R (R-3, Figure IV.17) à l'image du ruban O-3, un système mélangé est observé avec le premier ruban puisqu'il est caractérisé par un diamètre plus élevé ($d_{\text{hélice (interne R)}} = 14,5 \text{ mm} > d_{\text{hélice (interne O)}} = 9,38 \text{ mm}$).

L'interne B se caractérise par un diamètre important (12,19 mm). Cependant, sous toutes les conditions opératoires testées, cet interne présente des zones non-mélangées à cause de la largeur fine (1,68 mm) et du petit pas (11,75 mm, voir partie 3.1.1.2 et partie 3.1.1.2). Le traceur reste centré tout au long du tube et la solution du traceur ne se mélange pas avec le flux d'alimentation primaire, même en augmentant l'amplitude et la fréquence des pulsations. Le résultat de l'interne B-2 est illustré en Figure IV.17. L'interne V possédant trois différents diamètres ($d_{\text{hélice}} = 14,5 \text{ mm}$, 6,5 mm, et 10,75 mm) présente aussi les mêmes résultats sous

toutes les conditions opératoires testées (ex : V-6, Figure IV.17) en raison de sa largeur fine (1,68 mm).

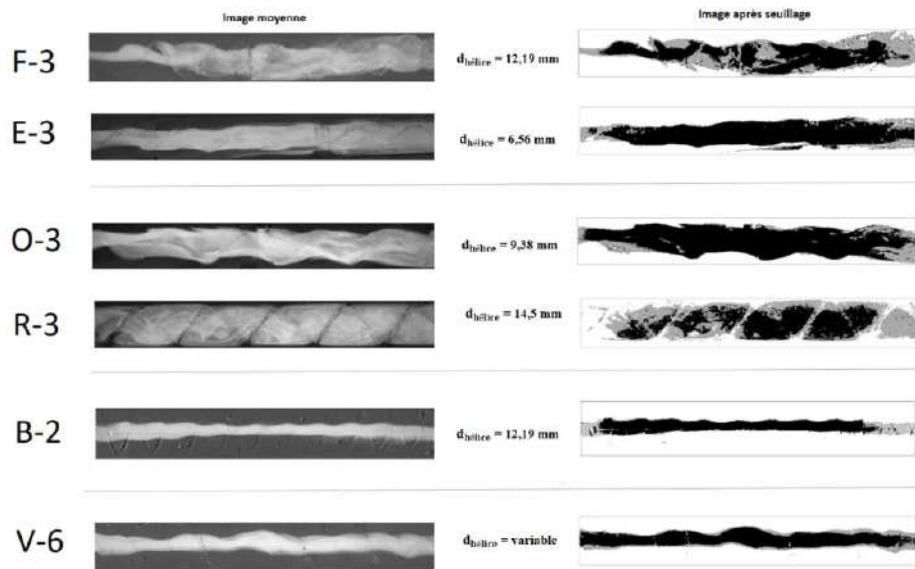


Figure IV.17: Les images obtenues après seuillage pour les internes F, E, O, R, B, et V

3.1.1.2 Influence de la largeur du ruban

Dans ce paragraphe, les images des différents rubans présentant des diamètres et des pas identiques (groupe *b*, Tableau IV.4) sont comparées.

Les rubans F et H se caractérisent par un diamètre de 12,19 mm et un pas de 21,25 mm. Les images de ces deux internes montrent que, contrairement au système H-2, la solution du traceur ne se mélange pas avec le flux d'alimentation primaire avec le système F-2 (Figure IV.18). Cela est dû au fait que l'interne F se caractérise par une largeur plus petite que la largeur du ruban H ($\text{largeur}_{(\text{interne H})} = 3,06 \text{ mm} > \text{largeur}_{(\text{interne F})} = 1,68 \text{ mm}$).

L'effet de la petite largeur est aussi observé avec les internes I et M ($\text{largeur}_{(\text{interne I})} = 2,37 \text{ mm} > \text{largeur}_{(\text{interne M})} = 3,75 \text{ mm}$). Le système I-5 présente des zones sur-concentrées tout au long du réacteur, tandis que le système M-5 est bien mélangé (Figure IV.18).

L'interne C se caractérise par une largeur importante (3,06 mm). Aucune influence de ce paramètre est observée (systèmes sur-concentrés tout au long du réacteur, Figure IV.18). Cela est peut-être dû aux faibles pas et diamètre du ruban.

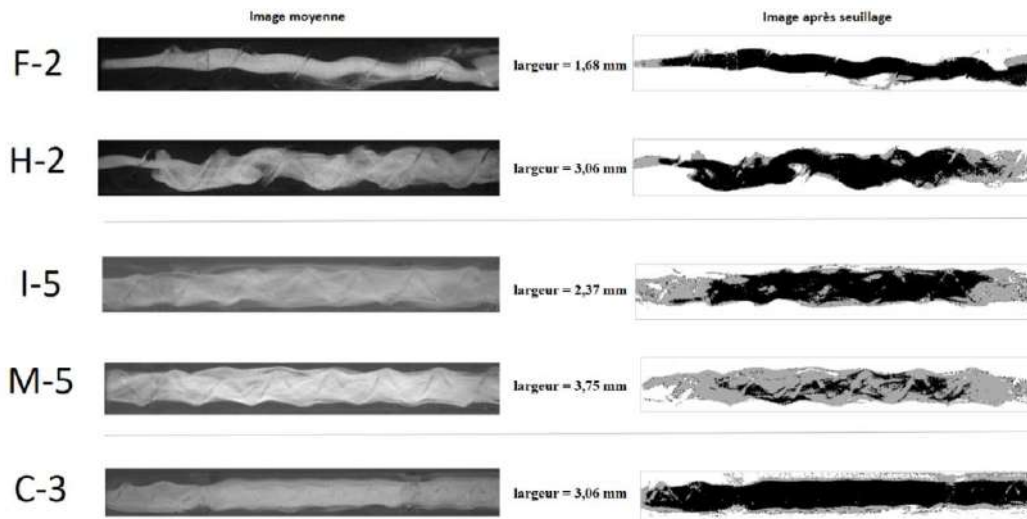


Figure IV.18: Les images obtenues après seuillage pour les internes F, H, I, M, et C

3.1.1.3 Influence du pas

Dans ce paragraphe, les images des différents rubans présentant des diamètres et des largeurs identiques (groupe c, Tableau IV.4) sont comparées.

A titre d'exemple, les rubans hélicoïdal D et H se caractérisent par un diamètre d'interne et une largeur assez importants ($d_{\text{hélice}} = 12,19$ mm et largeur = 3,06 mm). La Figure IV.19 montre que l'interne D présente des mauvaises performances à cause du petit pas (11,75 mm), alors qu'un système bien mélangé est détecté avec l'interne H ayant un grand pas (21,25 mm). Avec un petit pas (un ruban hélicoïdal serré), il n'y aura pas d'assez d'espace pour que les tourbillons se développent.

Les internes I et N présentent aussi une largeur et un diamètre identiques ($d_{\text{hélice}} = 9,38$ mm et largeur = 2,37 mm). Contrairement au système I-1, le système N-1 présente des zones sur-concentrées (Figure IV.19). Le petit pas de l'interne N (7 mm) influence négativement sur la qualité du mélange dans le COBR.

Les internes A et E se caractérisent par un diamètre de 6,56 mm et une largeur de 1,68 mm. Les images obtenues après seuillage montrent que ces deux rubans présentent des systèmes sur-concentrés (A-4 et E-4, Figure IV.19). En augmentant le pas du ruban ($\text{pas}_{(\text{interne E})} = 21,25$ mm > $\text{pas}_{(\text{interne A})} = 11,75$ mm), le COBR avec l'interne E présente toujours des zones sur-concentrées à cause du petit diamètre et de la petite largeur.

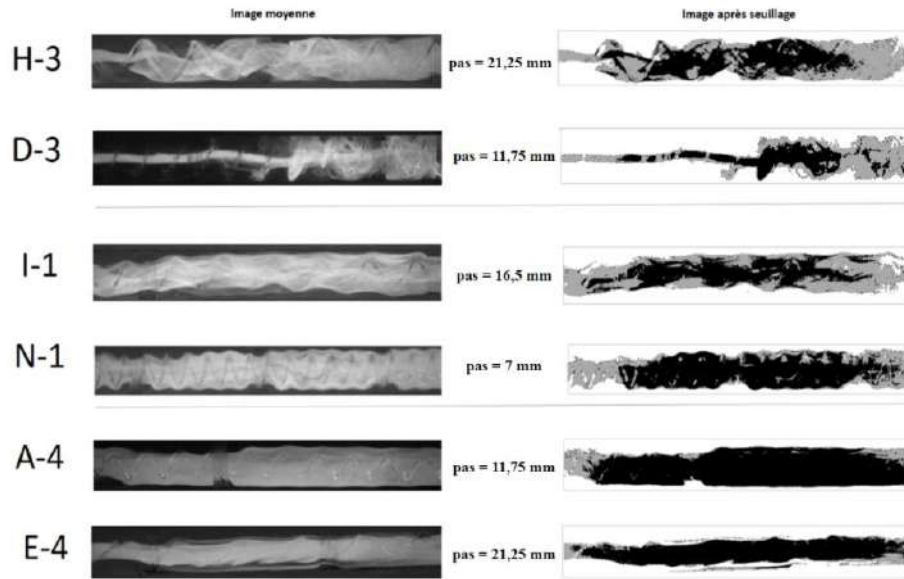


Figure IV.19: Les images obtenues après seuillage pour les internes H, D, I, N, A, et E

3.1.1.4 Conclusion

Il existe une forte interaction entre les paramètres géométriques des internes (diamètre, pas, et largeur). En se basant sur les 13 structures imprimées et sur les résultats des images obtenus après seuillage, les internes ayant une très petite largeur (ex : 1,68 mm), un petit diamètre (ex : 6,56 mm), ou un petit pas (ex : 11,75 mm) présentent des systèmes non-mélangés ou sur-concentrés dans lesquels la couleur blanche ou noire domine.

On peut conclure que :

- Une largeur minimum (de 3,06 mm) est nécessaire pour créer l'écoulement transverse.
- Un pas assez important (supérieur à 16,5 mm) est indispensable pour générer des tourbillons.
- L'augmentation du diamètre de l'interne entraîne une amélioration du degré de mélange dans les COBR.

3.1.2 Influence des conditions opératoires

Les performances du COBR dépendent aussi des conditions opératoires (ex : fréquence f et amplitude des pulsations x_o , viscosité du mélange μ_f). En se basant sur les caractéristiques de nos différents rubans hélicoïdaux et sur les images obtenues après seuillage, l'influence des conditions opératoires est analysée dans cette partie. Les expériences effectuées avec les 13 rubans hélicoïdaux sont classifiées en 6 groupes selon les différentes conditions opératoires (Tableau H.1 en Annexe H et partie 2.2).

3.1.2.1 Influence de l'amplitude

Avec une viscosité dynamique μ_f et une masse volumique ρ_f données, les nombres de Reynolds net et oscillatoire sont calculés avec $Re_{net} = \frac{\rho_f U_{net} D_{COBR}}{\mu_f}$ et $Re_o = \frac{2\pi f x_o \rho_f D_{COBR}}{\mu_f}$ (chapitre I, 2.2.1). L'augmentation de l'amplitude des pulsations entraîne une augmentation du nombre de Reynolds oscillatoire, et donc, améliore la qualité du mélange dans les COBR.

Par exemple, sous les conditions opératoires 1 et 3, Re_o est égal à 79 (avec $x_o = 5,5$ mm) et 180 (avec $x_o = 12,5$ mm) pour un même Re_{net} (42). Le rapport de vitesses ψ_v est alors égal à 1,9 et 4,3, respectivement. Mortazavi et Pakzad (2020) ont montré que l'augmentation de l'amplitude (et du nombre de Reynolds oscillatoire) provoque une augmentation des instabilités hydrodynamiques et une amélioration de la dispersion du fluide, ce qui diminue en conséquence le temps du mélange dans le réacteur. Ce résultat est illustré en Figure IV.20 avec les internes H et M.

D'un autre côté, l'augmentation de l'amplitude des pulsations diminue le nombre de Strouhal et alors limite la génération des tourbillons dans le COBR. En effet, le nombre de Strouhal ($St = \frac{D_{COBR}}{4\pi x_o}$) est inversement proportionnel à l'amplitude des pulsations. Avec notre plan d'expériences, pour $x_o = 12,5$ mm, St est égal à 0,1 et pour $x_o = 5,5$ mm, St est égal à 0,22. Les valeurs les plus élevées de St favorisent la génération des tourbillons et améliorent la qualité du mélange dans le réacteur (Ahmed et al., 2017). Ce comportement est observé avec le système I-1 ($x_o = 12,5$ mm et $St = 0,1$) qui présente des zones bien mélangées, mais aussi, avec I-3 ($x_o = 5,5$ mm et $St = 0,22$), où le système reste sur-concentré tout au long du réacteur (Figure IV.20).

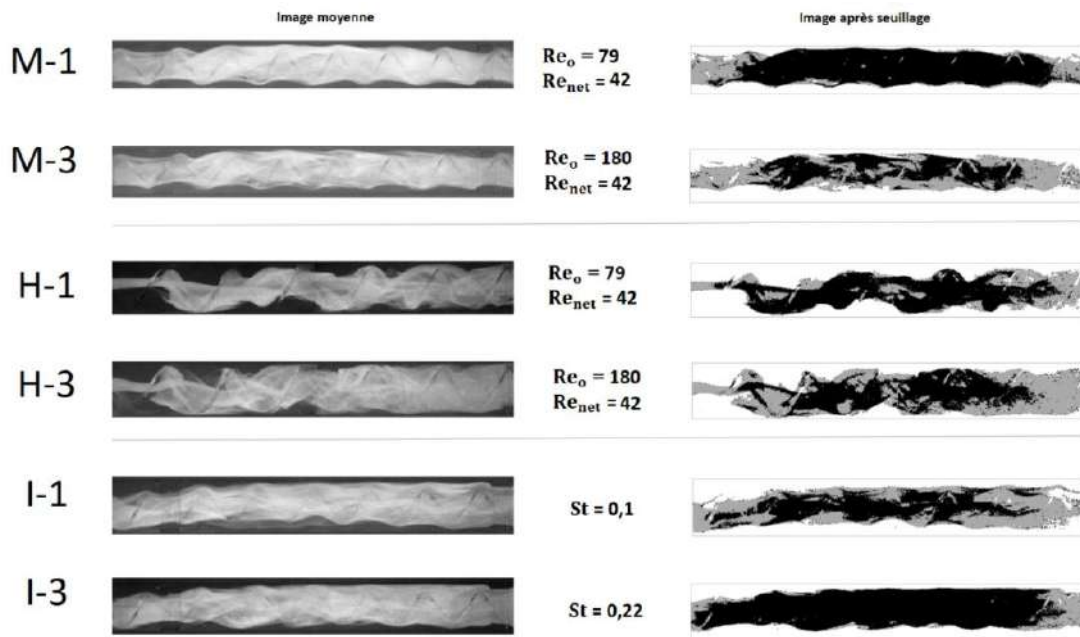


Figure IV.20: Les images obtenues après seuillage pour les internes M, H, et I

3.1.2.2 Influence de la fréquence

L'influence de la fréquence des pulsations sur le mélange est quasiment négligeable. Cela est observé avec les images de la plupart des rubans hélicoïdaux. Un exemple des systèmes D-5 et D-6 est illustré en Figure IV.21. Les études de Mortazavi et Pakzad (2020) ont également montré que la fréquence des pulsations n'apporte aucune contribution significative aux performances des réacteurs oscillatoires.

Néanmoins, avec quelques systèmes (ex : M-3 et M-4), la diminution de la fréquence des pulsations améliore le degré de mélange dans les COBR (Figure IV.21). Cela est relié aux valeurs des nombres de Reynolds oscillatoire. Avec $f = 1$ Hz, le nombre de Reynolds oscillatoire est inférieur à 250 ($Re_o = 180$ et $\psi_v = 4,3$), alors qu'avec $f = 1,5$ Hz, le nombre de Reynolds oscillatoire est égal à 270 (et $\psi_v = 6,45$). Stonestreet et Van Der Veecken (1999) ont identifié trois différents régimes d'écoulement, un écoulement bidimensionnel axisymétrique pour un Reynolds oscillatoire inférieur à 250, un écoulement tridimensionnel pour un Reynolds oscillatoire compris entre 250 et 2000, et un écoulement turbulent pour un Reynolds oscillatoire supérieur à 2000. Dans notre cas et pour la plupart des conditions, Re_o est inférieur à 250 (ex : système M-3). L'écoulement est bidimensionnel dans ce cas et est dit axisymétrique ; la génération des tourbillons axisymétriques favorise le mélange radial (Zheng et al., 2007).

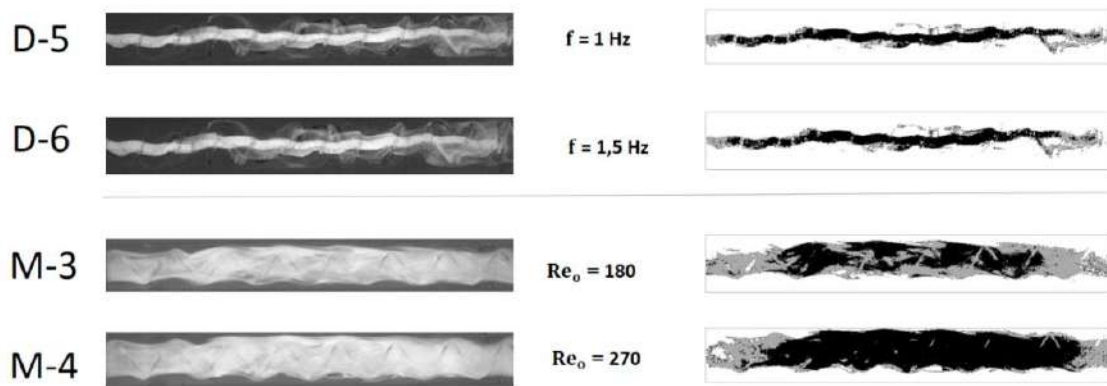


Figure IV.21: Les images obtenues après séchage pour les internes D et M

3.1.2.3 Influence de la viscosité du fluide

La viscosité du fluide est inversement proportionnelle aux nombres de Reynolds net et oscillatoire. Une augmentation de la viscosité entraîne une diminution des nombres de Reynolds. Par exemple, sous une même fréquence et amplitude ($x_o = 12,5$ mm et $f = 1$ Hz), Re_{net} et Re_o sont égaux respectivement à 42 et 180 avec $x_{gly} = 0,175$ ($\mu_f = 0,00676$ Pa.s) tandis qu'avec $x_{gly} = 0,325$ ($\mu_f = 0,02517$ Pa.s), Re_{net} et Re_o sont respectivement égaux à 11 et 48. Une diminution de l'intensité du mélange est observée sous des faibles nombres de Reynolds net et oscillatoire. En effet, avec un système plus visqueux, la création des vortex est réduite dans le réacteur (Fitch et al, 2005). Une dispersion axiale est détectée le long du tube. Par conséquent, le fluide près de la paroi du réacteur devient moins ou pas du tout mélangé. A titre d'exemple, les images du système F-6 ($x_{gly} = 0,325$) montrent que la solution du traceur ne se mélange pas avec le flux d'alimentation primaire tandis qu'avec le système F-3 ($x_{gly} = 0,175$), un mélange plus efficace est observé (Figure IV.22).

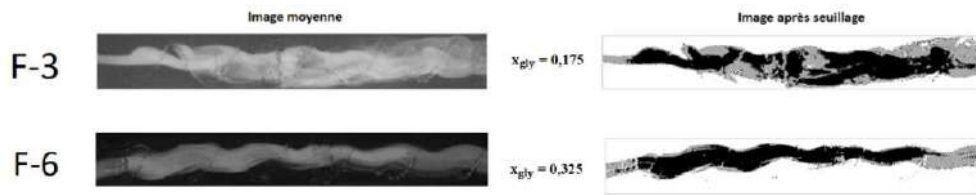


Figure IV.22: Les images obtenues après seuillage pour l'interne F

3.1.2.4 Conclusion

Il a été mis en évidence que l'amplitude des pulsations a un impact plus important sur les performances de mélange des COBR que la fréquence des pulsations.

L'augmentation de l'amplitude suggère une augmentation du nombre de Reynolds oscillatoire et une amélioration du degré du mélange dans le réacteur, mais aussi avec des faibles amplitudes, le nombre de Strouhal devient élevé, ce qui peut améliorer la qualité du mélange. La compétition de ces deux phénomènes explique l'influence contradictoire de l'amplitude des pulsations sur les performances des différents rubans hélicoïdaux.

3.1.3 Rapport entre l'amplitude et le pas

Le rapport entre l'amplitude et le pas est un facteur essentiel qui influence les performances des COBR. Phan et Harvey (2011) ont démontré que ce rapport doit être toujours compris entre 0,2 et 0,6. Même si le ruban hélicoïdal est caractérisé par un grand pas, cela ne signifie pas qu'il possède des performances notables en termes d'écoulement et de mélange. Le rapport amplitude/pas doit être vérifié d'une part, d'autre part l'interne doit présenter une largeur et un diamètre importants (partie 3.1.1).

Avec un pas de 11,75 mm, le rapport amplitude/pas vaut 1,06 pour $x_0 = 12,5$ mm et 0,46 pour $x_0 = 5,5$ mm. L'effet du petit pas reste dominant (et donc moins de tourbillons sont générés), malgré le fait que le rapport est inférieur à 0,6. Cela est observé avec les images des rubans A, B, C, et D (Figure IV.17, IV.18, IV.19, et IV.21). En augmentant la largeur du ruban (largeur $_{(interne C)} = 3,06$ mm > largeur $_{(interne A)} = 1,68$ mm), les COBR présentent toujours des zones sur-concentrées à cause du petit pas.

Avec un pas assez important (16,5 mm, ex : ruban I), les résultats dépendent de l'amplitude du flux oscillatoire. Le rapport amplitude/pas est égal à 0,75 pour $x_0 = 12,5$ mm (I-3, Figure IV.20) tandis qu'avec $x_0 = 5,5$ mm, le rapport est égal à 0,33 (I-1, Figure IV.20).

Avec un pas de 21,25 mm (ex : ruban H), le rapport amplitude/pas vaut environ 0,25 et 0,6 avec $x_0 = 5,5$ et 12,5 mm, respectivement. Avec un pas de 26 mm (ex : interne R), la gamme d'amplitude est bien choisie par rapport au pas ($12,5/26 = 0,48$ et $5,5/26 = 0,21$). Les deux rubans R et H possèdent des rapports amplitude/pas compris entre 0,2 et 0,6 sous nos différentes conditions opératoires. Toutefois, les performances de l'interne R (Figure IV.11) sont plus remarquables en comparaison avec l'interne H (H-1, H-2, H-3, Figure IV.18 et IV.20) grâce à un diamètre du ruban plus élevé et une largeur plus importante (partie 3.1.1).

3.2 Analyse quantitative

3.2.1 Identification des zones de mélange

Les Figures IV.23, IV.24 et IV.25 représentent respectivement la variation des pourcentages gris, noirs, et blancs en fonction de la longueur pour tous les essais classés selon les conditions opératoires. Pour chaque couleur (noir, blanche, et grise), on obtient alors six graphes différents.

En se basant sur ces figures, un pourcentage élevé de pixels blancs (supérieur à 80%) signifie que le réacteur avec son ruban hélicoïdal présente des zones recevant une faible quantité de traceur ou parfois même pas du traceur. Un pourcentage significatif de pixels noirs (supérieur à 50%) indique la présence des zones sur-concentrées tout au long du réacteur. Un pourcentage important de pixels gris (supérieur à 30%) est caractéristique d'un système mélangé correctement.

Pour les systèmes où la solution du traceur ne se mélange pas avec le flux d'alimentation primaire (ex : système B-4) le pourcentage des pixels blancs reste élevé (supérieur à 80%) sur toute la longueur du tube (courbe en jaune, Figure IV.25), alors que les pixels gris présentent des faibles pourcentages (inférieur à 5%, Figure IV.23) et les pourcentages des pixels noirs sont compris entre 10 et 20% (Figure IV.24).

Pour les configurations présentant des systèmes sur-concentrés, les pourcentages des pixels noirs augmentent en s'éloignant du tube en T utilisé pour l'injection de la solution du traceur tandis que les pourcentages des pixels blancs diminuent. A titre d'exemple, la Figure IV.24 montre que le système A-1 présente un pourcentage de pixels noirs supérieur à 50% et des pourcentages faibles de pixels blancs et gris sous toutes nos conditions opératoires (courbe en vert foncé, Figures IV.23 et IV.25).

Pour les systèmes mélangés (ex : système R-6, courbe en orange), le pourcentage des pixels gris augmente en s'éloignant du tube d'injection du traceur (Figure IV.23) tout en conservant un faible pourcentage de pixels blancs (inférieur à 40%, Figure IV.25) et un pourcentage de pixels noir inférieur à 50% (Figure IV.24).

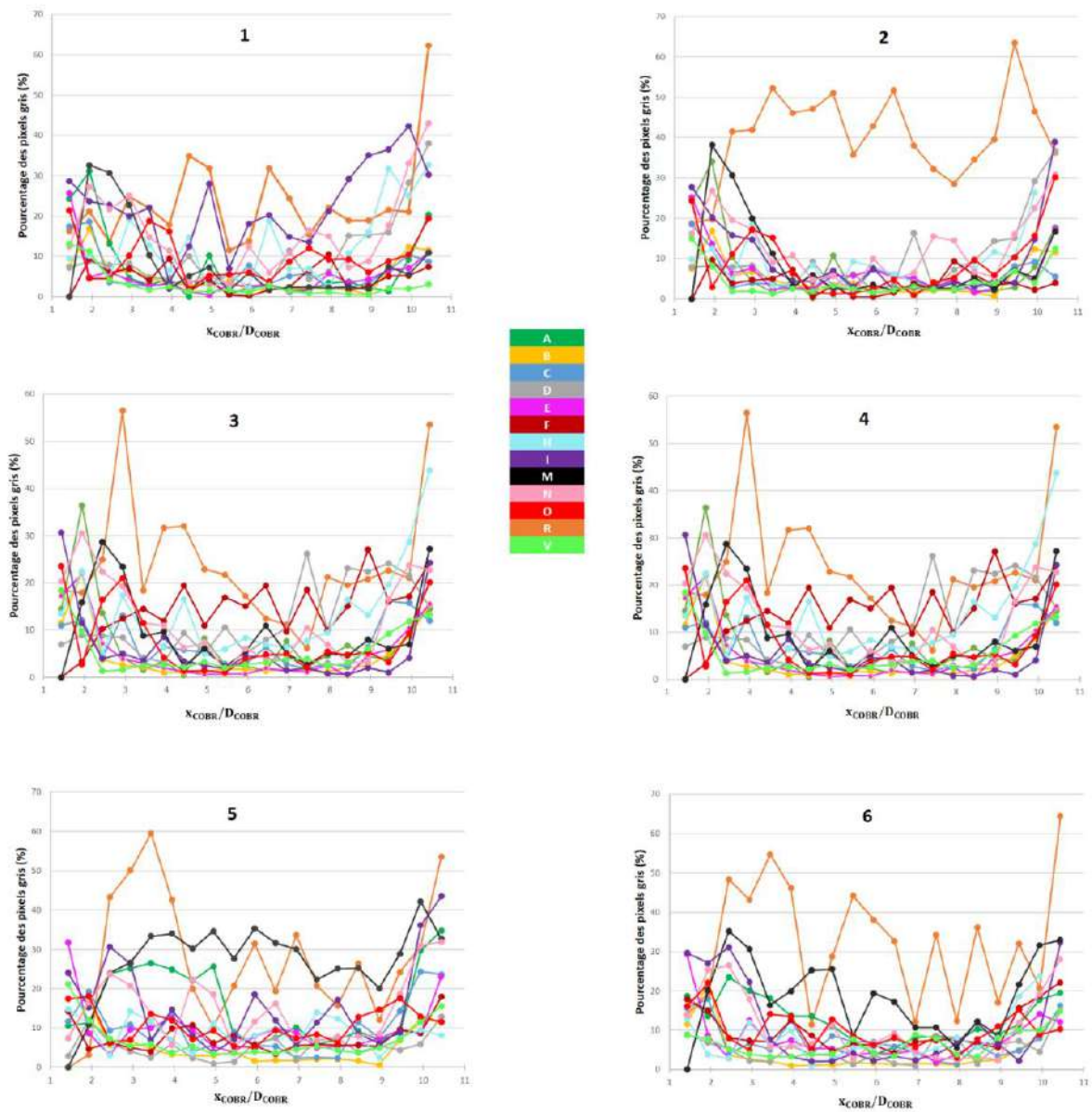


Figure IV.23: Variation du pourcentage des pixels gris en fonction de la position axiale dans le tube pour 13 géométries d'internes et sous différentes conditions opératoires

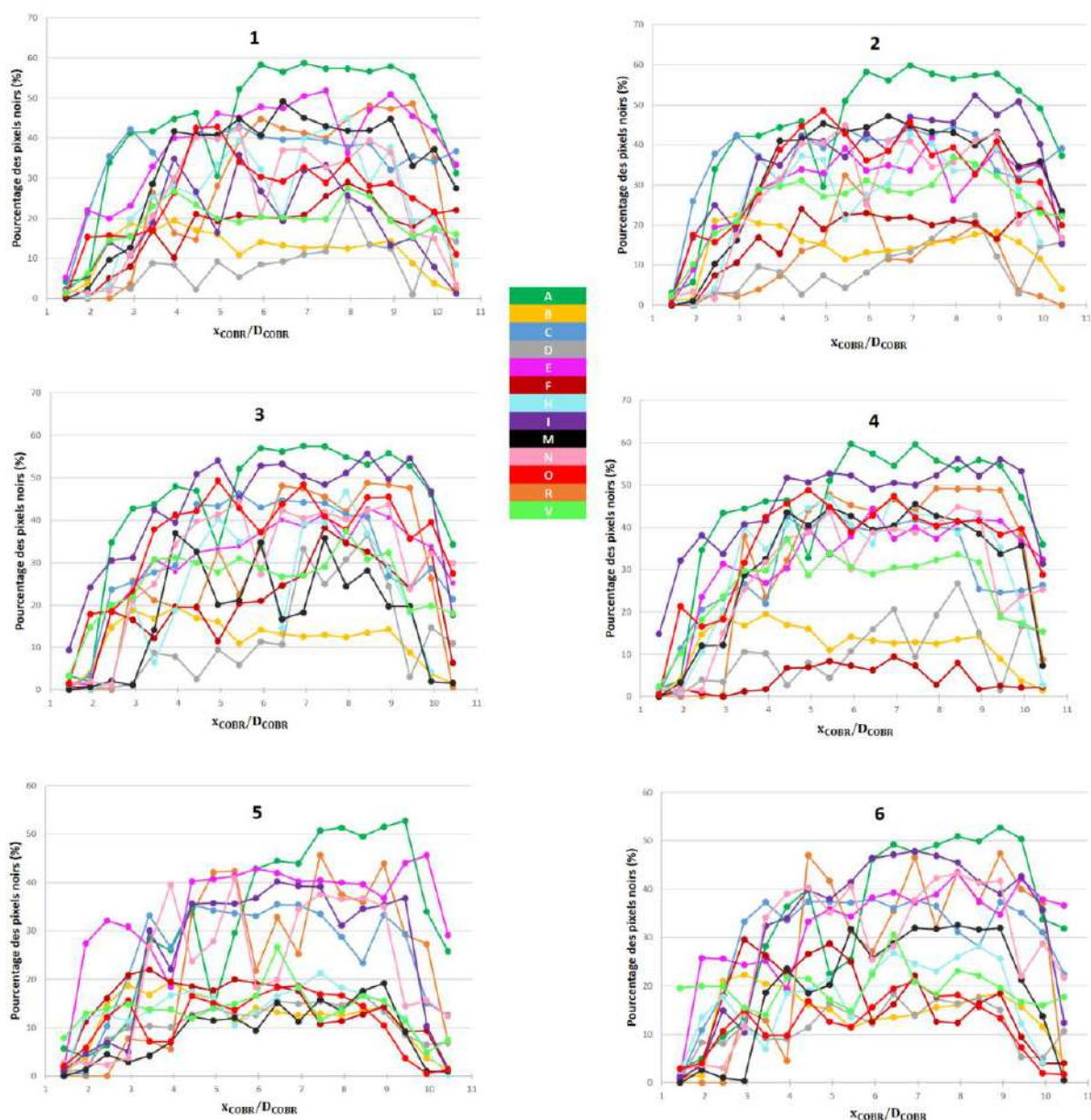


Figure IV.24: Variation du pourcentage des pixels noirs en fonction de la position axiale dans le tube pour 13 géométries d'internes et sous différentes conditions opératoires

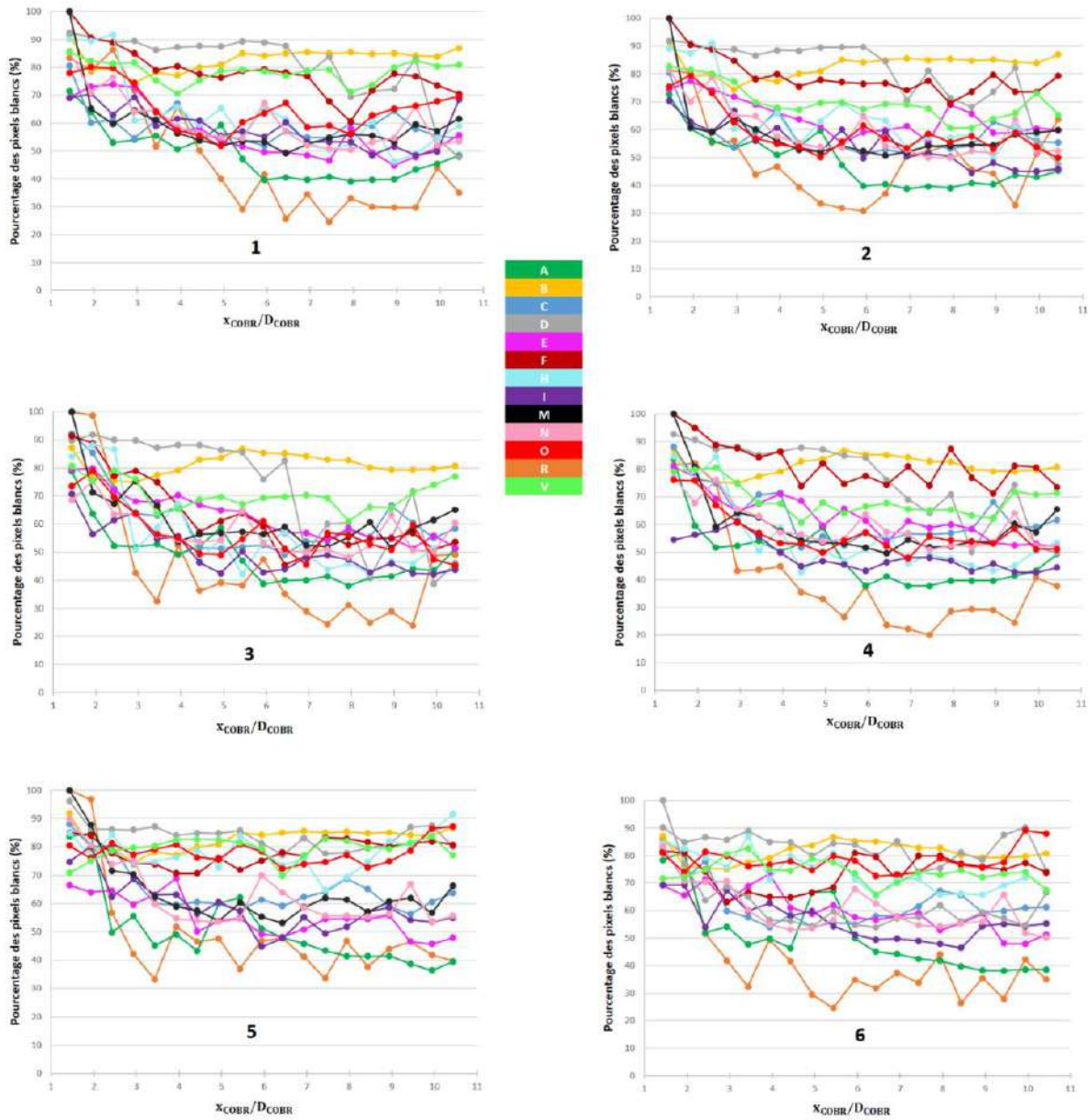


Figure IV.25: Variation du pourcentage des pixels blancs en fonction de la position axiale dans le tube pour 13 géométries d'internes et sous différentes conditions opératoires

A partir de ces figures, un tableau récapitulatif des résultats est présenté ci-dessous (Tableau IV.5). Ce tableau de synthèse présente les tendances des internes les plus remarquables en termes de pourcentage de pixels gris, blancs, et noirs en tenant compte des conditions opératoires.

Tableau IV.5: Résumé des résultats présentés

Pixels	Pourcentage	Qualité du mélange	Conditions opératoires (partie 2.2)					
			1	2	3	4	5	6
Gris	> 30%	Bien mélangé	R, I	R	R, H, M	R, H	R, M	R, M
Blancs	> 80%	Non-mélangé	B, D	B, D	B, D	B, F, D	B, F, H, D, O, V	B, D, O, V
Noirs	> 50%	Sur-concentré	A, E	A	A, I	A, I	A	A
Gris	< 10%	Non-mélangé ou Sur-concentré	A, B, E, F, C	A, B, E, F, C	A, B, E, I	A, B, E, C, I	B, C, D	B, C, D, I
Blancs	< 40%	Bien mélangé ou Sur-concentré	R, A	R, A	R, A	R, A	R, A	R, A
Noirs	< 10%	Non-mélangé	B, D	D, B, H	B, D	B, F, D	M, B, O	D, F, O

Compte tenu de ces observations, un grand nombre d'internes hélicoïdaux non performants sont éliminés. Ce sont les configurations possédant une très petite largeur, un petit diamètre, ou un petit pas (ex : rubans A, B, C, D, E, F, N, O), présentant alors des mauvaises qualités de mélange (sur-concentrées ou non-mélangées) tout au long du réacteur. Ces géométries ne sont pas performantes dans la gamme des conditions opératoires étudiées (Tableau IV.5).

Les internes sélectionnés pour l'évaluation du mélange (Figure IV.9) sont les rubans hélicoïdaux présentant des pourcentages de pixels gris supérieurs à 30% (systèmes mélangés) sous les conditions opératoires testées (rubans R, I, H, M, Tableau IV.5). Ces structures se caractérisent par une largeur supérieure à 2,37 mm, un pas supérieur à 16,5 mm et un diamètre d'interne supérieur à 9,38 mm. Comme il a été conclu précédemment (partie 3.1.1.4), l'augmentation du diamètre de l'interne, de la largeur, et du pas entraîne une amélioration du degré de mélange dans le réacteur.

De plus, le Tableau IV.5 montre qu'il y a des géométries qui sont performants pour plusieurs conditions opératoires (ex : H-3 et H-4, M-3, M-5, et M-6) et d'autres qui ne sont adaptées qu'à une seule condition opératoire (ex : I-1). L'interne R qui touche les parois du réacteur et a un pas élevé et une largeur importante, réussit à supporter toutes les conditions opératoires testées. Cette géométrie présente toujours des pourcentages de pixels gris supérieurs à 30% (des zones mélangées tout au long du réacteur).

3.2.2 Evaluation de la qualité du mélange

Cette étude est appliquée aux 12 systèmes sélectionnés en partie 3.2.1 : R-1, R-2, R-3, R-4, R-5, R-6, H-3, H-4, I-1, M-3, M-5, et M-6.

3.2.2.1 Dispersion par rapport à une concentration parfaitement mélangée

La dispersion de la concentration du traceur dans le tube par rapport à une concentration parfaitement mélangée est représentée à travers le calcul de la variance (σ_V) (Eq. IV.2 – partie 2.4.3.2.1). Cette variance est représentée en fonction de la position axiale dans le tube.

Les Figures IV.26 et IV.27 illustrent les résultats. Les tendances des courbes sont logiques ; en s'éloignant du tube d'injection, la concentration du mélange tend vers la concentration du système parfaitement mélangée, ce qui entraîne une diminution de la variance.

Les concentrations obtenues durant les essais effectués avec l'interne R présentent un fort écart (σ_V entre 0,02 et 0,97) par rapport à la concentration parfaitement mélangée (Figure IV.26), contrairement aux autres internes hélicoïdaux (σ_V entre 0,002 et 0,076, Figure IV.27).

Avec les internes H, I, et M, la solution d'eau/glycérol et le bleu de méthylène n'occupe pas tout le volume du réacteur (Figure IV.27). En calculant la différence entre la concentration de chaque tranche horizontale et la concentration parfaitement mélangée $\left(\frac{C_n}{C_{pm}} - 1\right)$, un écart important est obtenu pour les tranches représentant les zones mortes du réacteur qui ne reçoivent pas de traceur. Toutefois, en recalculant la variance (Eq. IV.2) pour une tranche verticale (comme l'exemple de la Figure IV.12), les écarts importants seront gommés sur la moyenne. Le calcul de la variance n'est alors pas représentatif des observations. Cela est probablement causé par l'incertitude des valeurs du niveau de gris (liée à la qualité d'image).

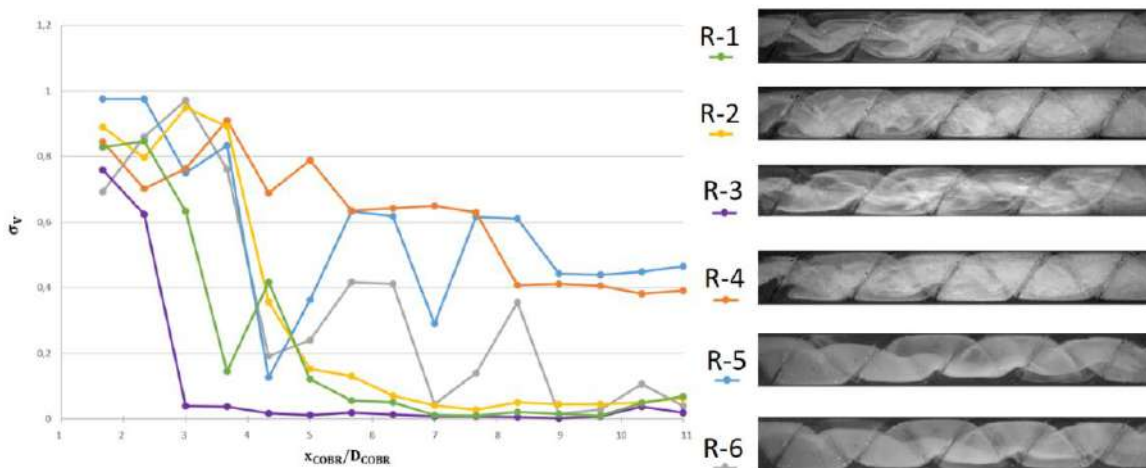


Figure IV.26: L'évolution de la variance en fonction de la position axiale dans le tube pour les différents essais effectués avec l'interne R

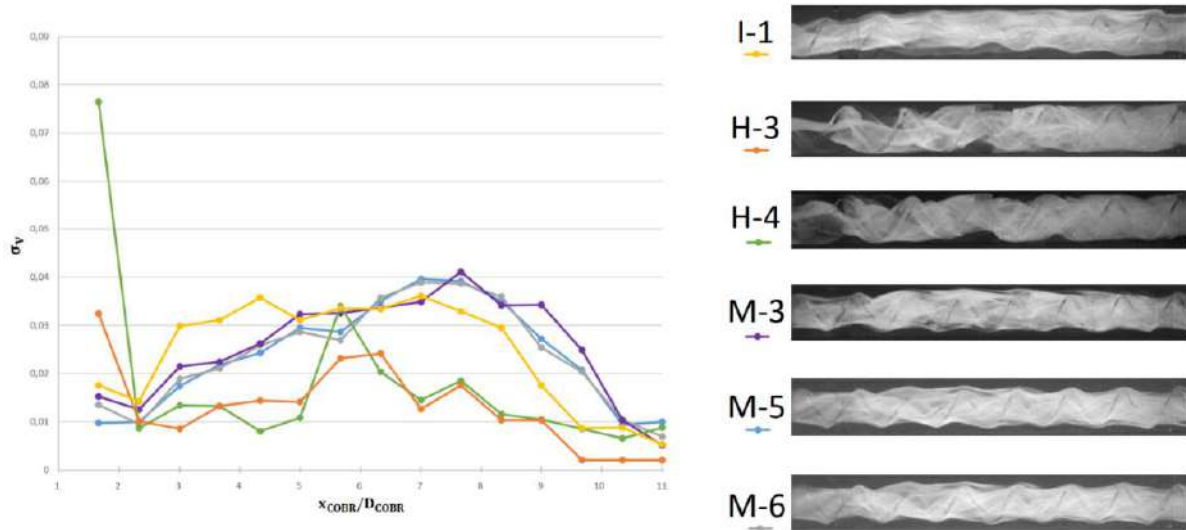


Figure IV.27: L'évolution de la variance en fonction de la position axiale dans le tube pour les différents essais effectués avec l'interne H, I, et M

3.2.2.2 Détermination du pourcentage de mélange

Comme détaillé précédemment, le rapport entre le gradient du niveau de gris (gradient de concentration) et le diamètre du tube est déterminé par l'équation IV.3 (partie 2.4.3.2.2). La variation de ce gradient en fonction du diamètre du tube permet de déterminer une largeur de plateau définie par la longueur de la zone où la pente varie entre -20 et 20 (ex : Figure IV.16). A partir de cette largeur, un pourcentage de mélange est calculé (Eq. IV.4) afin de caractériser le mélange dans les COBR sélectionnés en partie 3.2.1.

Les Figures IV.29 et IV.30 illustrent les résultats selon les différentes conditions opératoires. Ces résultats sont comparés à deux cas de référence, un système parfaitement mélangé et un système non-mélangé, qui est le système B (Figure IV.28). Le premier système est caractérisé par une largeur de plateau égale à environ 15 mm (pourcentage de mélange = 100%) alors que le deuxième système est caractérisé par une largeur de plateau égale à 1,56 mm (proche de la valeur du diamètre du tube d'injection du traceur), et donc, un pourcentage de mélange de 20% tout au long du tube.

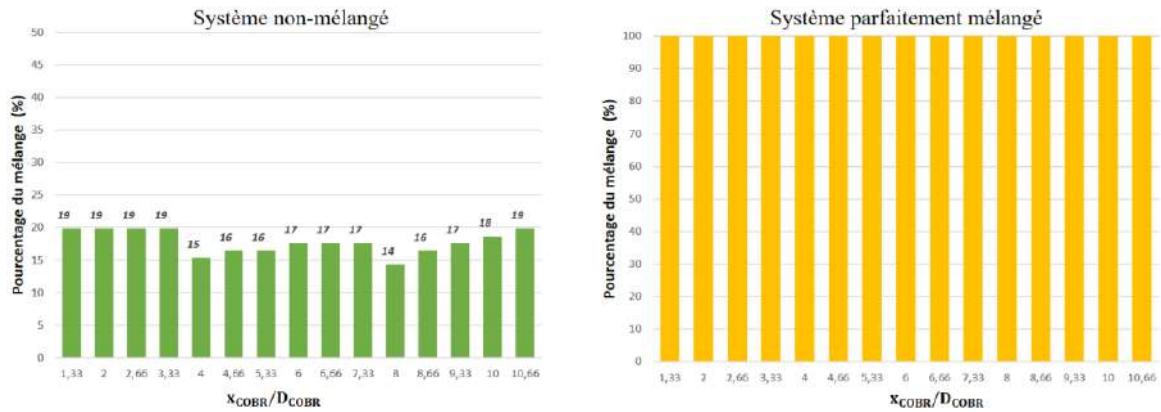


Figure IV.28: L'évolution du pourcentage du mélange en fonction de la position axiale dans le tube pour un système non-mélangé et un autre parfaitement mélangé

Un faible pourcentage de mélange est observé au début du tube (à côté du tube d'injection du traceur) pour tous les internes (ex : 36% pour le système R-1 et 16% pour H-3, Figure IV.29). Ce faible pourcentage représente un grand gradient de concentration entre le flux d'alimentation primaire et la solution du traceur. En s'éloignant du tube d'injection, le pourcentage du mélange augmente puisque le gradient de concentration diminue et la qualité du mélange augmente (ex : 84% pour le système R-1 et 70% pour H-3, Figure IV.29).

Les graphes IV.29 et IV.30 sont désormais bien représentatifs des images obtenues. Le ruban hélicoïdal R est l'interne le plus intéressant en terme de performances de mélange. Pour x_{COBR}/D_{COBR} égal à 3,33, le pourcentage de mélange dépasse les 70% pour arriver à un pourcentage supérieur à 80% (pour $x_{COBR}/D_{COBR} = 10,66$). Par exemple, sous la condition opératoire 4 (Figure IV.30), le pourcentage de mélange est de 72% et de 84% pour x_{COBR}/D_{COBR} égal respectivement à 3,33 et 10,66. Comme vu précédemment, l'interne R se caractérise par un pas de 26 mm, un diamètre de 14,5 mm, et une largeur de 3,75 mm. Des systèmes mélangés avec des pourcentages de pixels gris supérieur à 30% ont été observés sous différentes conditions opératoires grâce à ces caractéristiques géométriques intéressantes (partie 3.1.1 et partie 3.2.1). Ce comportement se traduit aussi par les pourcentages de mélange élevés calculés pour les graphes (Figures IV.29 et IV.30).

Cependant, pour les internes I et M, les pourcentages de mélange ne dépassent jamais les 64%. Les deux figures montrent que les pourcentages de mélange pour le système I-1 varient entre 39% et 60% et pour le système M-5 entre 38% et 52%.

De plus, pour l'interne H, il faut au moins 12 cm ($x_{COBR}/D_{COBR} = 8$) pour obtenir un pourcentage de mélange de 70%. La Figure IV.30 illustre ce résultat. Cette valeur reste plus élevée que les valeurs obtenues avec les internes I et M puisque la configuration H se caractérise par un pas, une largeur, et un diamètre plus importants (ce qui conduit à une génération supplémentaire des tourbillons et une amélioration du degré de mélange dans le tube) (partie 3.1.1).

En outre, avec l'interne M, une petite différence est détectée entre les pourcentages de mélange obtenus avec $x_{gly} = 0,175$ et $x_{gly} = 0,325$. Pour x_{COBR}/D_{COBR} égal à 10,66, un pourcentage plus élevé (+11%) est obtenu avec le système moins visqueux sous les mêmes conditions opératoires ($x_0 = 12,5$ mm et $f = 1$ Hz). Le même résultat est observé avec l'interne R ; le pourcentage de mélange atteint 91% pour $x_{gly} = 0,175$ alors que pour $x_{gly} = 0,325$, un

pourcentage plus faible est obtenu (79%). En effet, l'augmentation de la viscosité du mélange d'eau/glycérol entraîne une diminution du nombre de Reynolds oscillatoire et de l'intensité du mélange dans le réacteur ; Re_o est égal à 180 avec $x_{gly} = 0,175$ et à 48 avec $x_{gly} = 0,325$ (partie 3.1.2.3). Cela est observé à partir de la diminution des pourcentages (plateau moins large, variation importante de la concentration, système moins mélangé).

Finalement, cette méthode représente bien les zones du réacteur qui reçoivent une faible quantité de traceur. Comme vu précédemment, avec les internes M, I, et H, le traceur n'occupe pas tout le volume. Cela est représenté à travers un pourcentage de mélange inférieur à 70%, c'est-à-dire un gradient de concentration entre le milieu du tube (rempli d'eau/glycérol et bleu de méthylène) et les zones près de la paroi. Néanmoins, le calcul du gradient de concentration radial n'offre aucune information à propos de la dispersion de la concentration du traceur dans les COBR par rapport à une concentration parfaitement mélangée. Le calcul de la variance reste nécessaire pour obtenir ce type d'information.

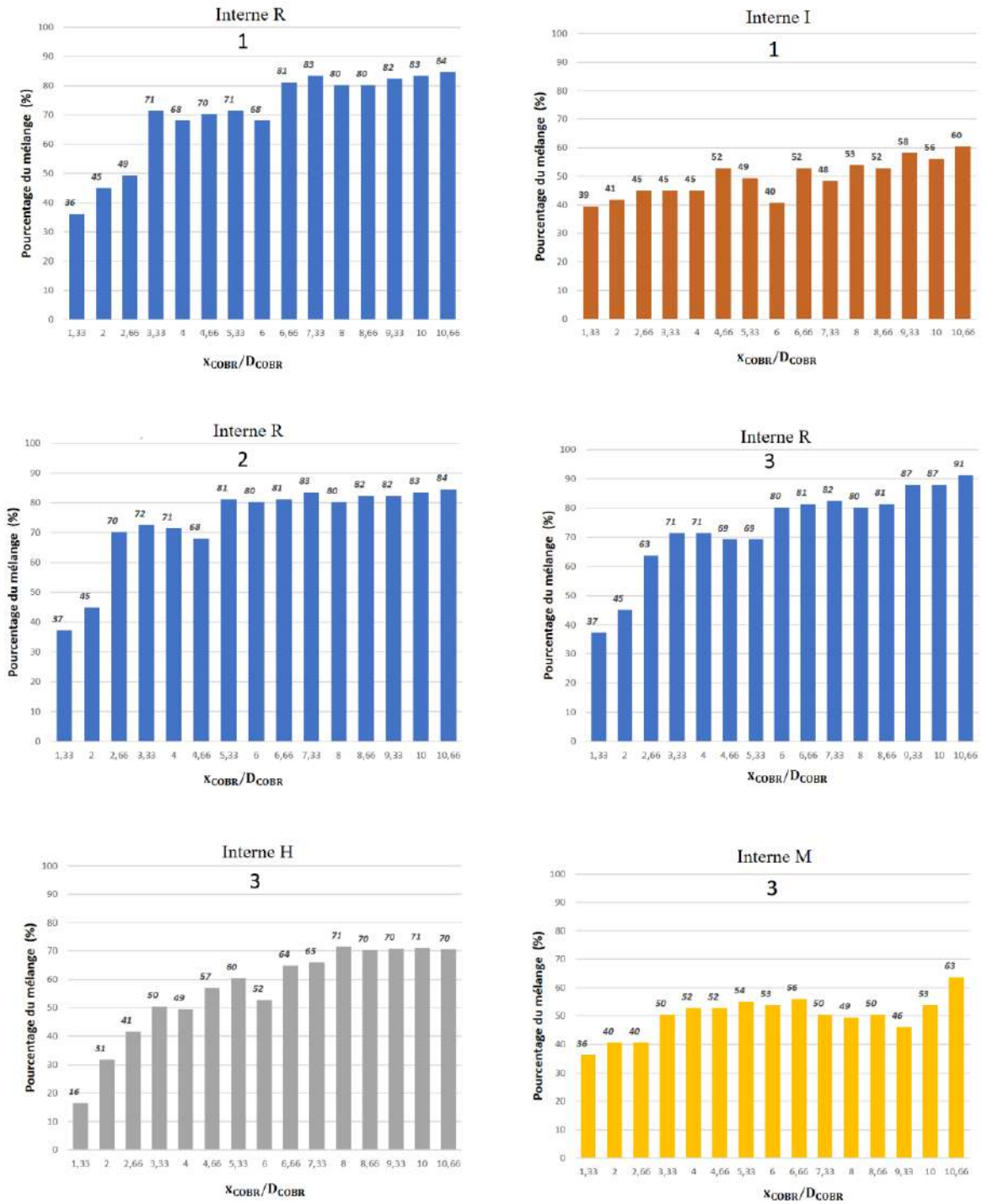


Figure IV.29: L'évolution du pourcentage du mélange en fonction de la position axiale dans le tube pour les internes R, H, I, et M

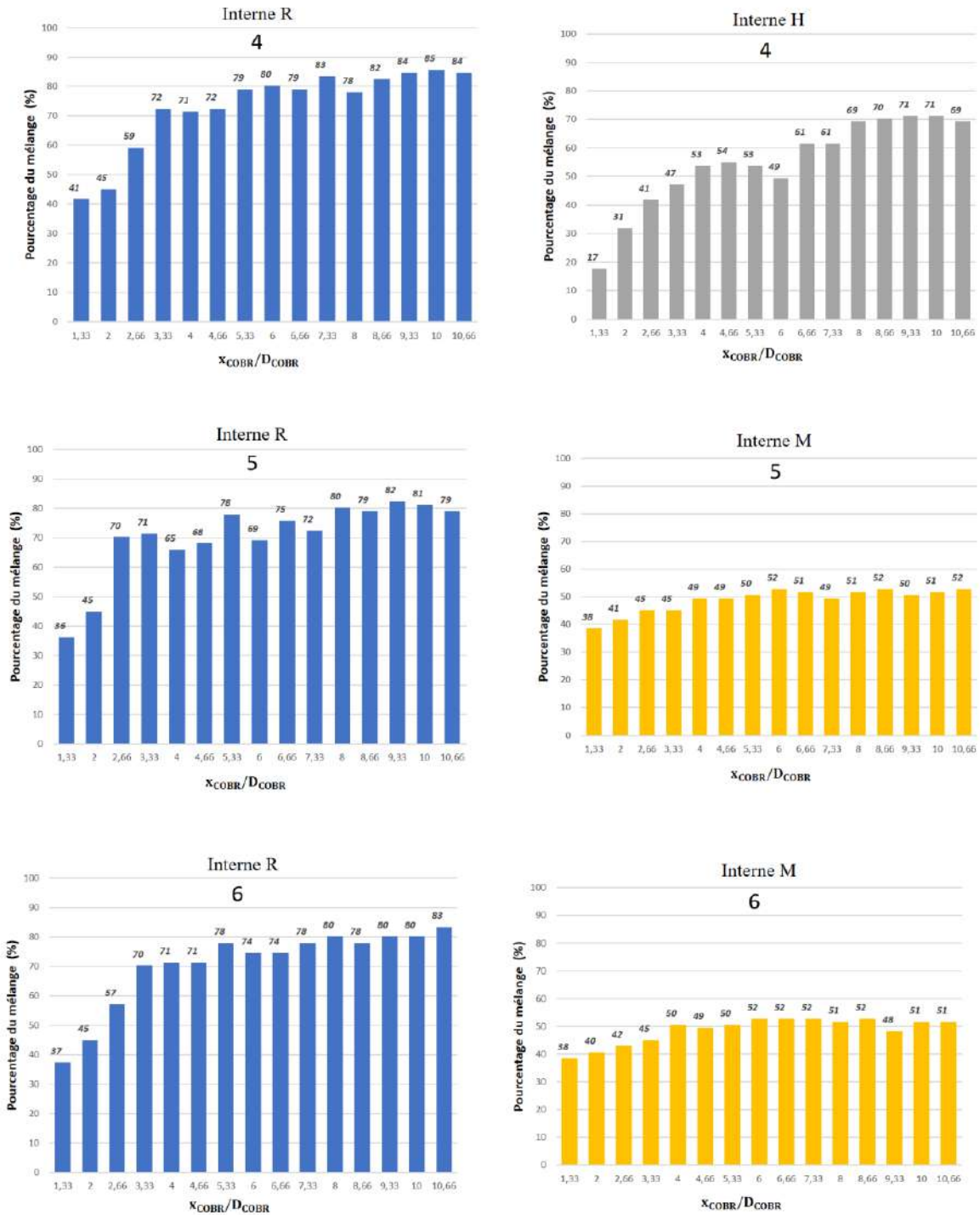


Figure IV.30: L'évolution du pourcentage du mélange en fonction de la position axiale dans le tube pour les internes R, H, et M

4. Conclusion

Des rubans hélicoïdaux ayant différents paramètres géométriques (ex : diamètre, pas, et largeur) sont imprimés via la fabrication additive. Ils sont introduits dans un réacteur oscillatoire continu en verre de diamètre 15 mm et de longueur 700 mm. 78 expériences sont effectuées avec ces structures complexes sous différentes conditions opératoires. Une solution de traceur (eau/glycérol et bleu de méthylène) est injectée de façon continue dans le courant du fluide (eau/glycérol) avec un flux oscillatoire. Des photos de l'écoulement dans le réacteur sont prises par une caméra rapide pour obtenir des images en niveau de gris.

Plusieurs analyses sont réalisées sur ces images, (i) des opérations arithmétiques (addition et soustraction) et (ii) la segmentation (seuillage). La dernière est une technique qui permet de transformer l'image réelle en une image ne contenant que 3 valeurs de pixels (noir, gris, et blanc).

Les images après seuillage sont comparées afin d'examiner l'influence des paramètres géométriques et des conditions opératoires sur la qualité du mélange dans les réacteurs oscillatoires continus. En terme de paramètres géométriques, il a été conclu ce qui suit : (1) une largeur minimale de 3,06 mm est nécessaire pour créer l'écoulement transverse, (2) un pas supérieur à 16,5 mm est indispensable pour générer des tourbillons, (3) un diamètre élevé (supérieur à 9,38 mm) est nécessaire pour améliorer le degré de mélange. En terme de conditions opératoires, l'influence de la fréquence des pulsations sur le mélange est quasiment négligeable tandis que l'amplitude des pulsations a un impact plus important sur les performances de mélange des COBR.

Un comptage des pixels est ensuite exécuté sur chaque image qui va servir à éliminer les internes non-performants. Suite à cette élimination, une étude préliminaire de caractérisation des performances de mélange est menée sur les internes non-éliminés. Des gradients de concentrations (ou de niveaux de gris) sont calculés pour déterminer une largeur de plateau et obtenir une représentation des images en pourcentages chiffrés. Un pourcentage de mélange est alors défini à partir de la largeur du plateau. Un pourcentage élevé indique que le système est bien mélangé et donc que le plateau est large et le gradient de concentration est faible. C'est le cas du ruban hélicoïdal R qui présente toujours un pourcentage de mélange supérieur à 70% pour arriver à environ 85% sous différentes conditions opératoires. Ce ruban se caractérise par un diamètre d'interne élevé, un pas élevé, et une largeur importante.

CONCLUSION GENERALE

CONCLUSION GENERALE

L'objectif principal de ces travaux de thèse était l'étude de l'apport de la fabrication additive au génie des procédés. Des structures complexes différentes pour deux applications (séparation et mélange) ont été alors créées et fabriquées : les garnissages Tetrasplines à base de fil comme contacteurs gaz-liquide et les rubans hélicoïdaux comme mélangeurs dans les réacteurs oscillatoires continus.

L'étude bibliographique effectuée dans la première partie a permis de décrire plusieurs types de structures complexes utilisées en génie des procédés. Cet inventaire a montré que chaque structure est caractérisée par des paramètres géométriques spécifiques qui aident à définir son application et qui influencent ses performances. Les structures à base de plaques ondulées ou tissées ainsi que les structures périodiques à cellules ouvertes présentent des taux de vide et des surfaces spécifiques élevés qui entraînent respectivement une diminution de la perte de charge et une augmentation de la surface de contact entre les phases et de l'efficacité de séparation. Ces deux types de structures sont alors utilisés dans des applications liées au transfert de chaleur et de masse comme les colonnes de distillation ou d'absorption. D'un autre côté, les internes hélicoïdaux conçus pour des réacteurs oscillatoires continus sont adoptés pour des applications en écoulement liquide-liquide, pour des opérations de mélange, et des réactions chimiques. Ces internes améliorent le caractère de l'écoulement piston et favorisent la génération des tourbillons le long du tube, ce qui augmente le contact entre les phases et le mélange radial. La plupart des objets présentés dans la littérature sont fabriqués avec des méthodes de fabrication classique. Avec l'apport de la fabrication additive, des nouvelles structures innovantes ayant une géométrie complexe et différente de celle des objets existants peuvent être créées, conduisant potentiellement à des propriétés d'usage plus intéressantes.

Dans la deuxième partie, une méthodologie d'optimisation morphologique de la première structure complexe sélectionnée (les garnissages Tetrasplines à base de fil) a été présentée. La première étape de la méthodologie est dédiée à la conception et la fabrication de l'objet. Différentes configurations sont créées en changeant les paramètres géométriques de la structure de référence. Les contacteurs gaz-liquide structurés sont imprimés par *frittage sélectif par laser (SLS)* et fusion sélective par laser (SLM). La deuxième étape est la caractérisation expérimentale des performances des structures imprimées. Des études hydrodynamiques et de transfert de matière sont réalisées sur les garnissages à base de fils afin de mesurer la perte de charge dans une colonne fonctionnant à contre-courant avec un système eau/air et eau/glycérol/air et la HEPT dans une colonne à reflux total avec un système cyclohexane/n-heptane. Enfin, la troisième étape concerne la modélisation des performances mesurées pour trouver les configurations intéressantes ayant les performances souhaitées. Une partie de cette démarche (conception, fabrication, et caractérisation des performances) est également appliquée à notre deuxième cas d'étude : les rubans hélicoïdaux.

Dans la troisième partie, l'hydrodynamique des garnissages pour un écoulement monophasique gaz et un écoulement diphasique gaz/liquide ainsi que l'efficacité en transfert de matière des différentes configurations conçues sont présentées. A partir des résultats expérimentaux de la perte de charge, des vitesses à l'engorgement, et de la HEPT des garnissages Tetrasplines, une modélisation des performances a été réalisée. Grâce à l'analyse dimensionnelle, quatre corrélations sont établies en définissant un lien entre les propriétés d'usage et les caractéristiques géométriques des structures dans le but de prédire les performances hydrodynamiques et de séparation. Une optimisation morphologique est ensuite réalisée en se basant sur ces corrélations via trois méthodes d'optimisation multicritère

CONCLUSION GENERALE

(epsilon contrainte, *goal programming*, I-MODE). En fixant des contraintes précises et en définissant des objectifs (minimisation de la perte de charge, maximisation de la vitesse à l'engorgement, minimisation de la HEPT), un ensemble de solutions est généré. Parmi ces solutions, une solution correspond à une nouvelle configuration Tetraspline qui est caractérisée par une HEPT de 0,26 m et une vitesse d'engorgement de 1,83 m/s.

Le quatrième chapitre est dédié aux internes de réacteurs oscillatoires continus. Les internes hélicoïdaux adoptés pour des applications en réaction et/ou mélange sont imprimés en 3D par le procédé de stéréolithographie (SLA). Des études expérimentales de caractérisation de mélange sont effectuées en injectant une solution de traceur (eau/glycérol et bleu de méthylène) de façon continue dans le courant du fluide (eau/glycérol) avec un flux oscillatoire. La performance de l'appareil en terme de qualité du mélange pour différentes conditions opératoires est évaluée par visualisation. Des images sont prises par une caméra rapide, puis analysées avec le logiciel Matlab. Des opérations arithmétiques (addition et soustraction) et une segmentation sont réalisées pour avoir une image avec seulement 3 valeurs de pixels (noirs, gris, et blancs). Suite à un comptage des pixels sur chaque image, les géométries présentant une mauvaise qualité de mélange (sur-concentrée ou non-mélangée) tout au long du réacteur tubulaire sont écartées tandis que les configurations avec des pourcentages de pixels gris supérieurs à 30% (représentant des systèmes bien mélangés) sont sélectionnées pour une étude préliminaire d'évaluation de mélange. Les résultats ont montré que les configurations possédant une très petite largeur, un petit diamètre, ou un petit pas ne sont pas performantes dans la gamme des conditions opératoires testées tandis que le ruban hélicoïdal caractérisé par un diamètre de 14,5 mm, une largeur de 3,75 mm, et un pas de 26 mm présente un pourcentage de mélange arrivant à 85% sous les différentes conditions opératoires.

Au niveau des perspectives, elles peuvent être séparées en trois parties :

– *Pour la première application, les garnissages Tetrasplines à base de fils :*

Le premier point à développer dans les perspectives à court terme est la validation des corrélations de la perte de charge, de la vitesse à l'engorgement et de la HEPT. Des essais supplémentaires doivent être réalisés avec d'autres systèmes diphasiques comme par exemple un système eau/éthanol/air pour les expériences hydrodynamiques et un système chlorobenzène/éthylebenzène ($\mu_{liq} = 0,0003 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ et $\rho_{liq} = 870 \text{ kg/m}^3$ à 1 bar) pour la distillation. L'objectif étant de développer des corrélations uniques permettant la prédiction des performances en termes d'hydrodynamique et de transfert de matière d'un système diphasique quelles que soient ses propriétés physico-chimiques. Ces essais avec des systèmes différents permettraient aussi de déduire si les exposants des nombres adimensionnels trouvés dans les corrélations sont significatifs. Ensuite, un point intéressant serait de choisir parmi les solutions présentées par les méthodes d'optimisation un garnissage TS performant afin de l'imprimer en 3D et vérifier s'il donne expérimentalement les mêmes résultats théoriques obtenus en terme de capacité et d'efficacité. Enfin, le dernier point à développer dans cette partie est la réalisation d'une nouvelle cartographie des régimes d'écoulement sur un fil et ses intersections pour un écoulement diphasique (à contre-courant) avec nos différents systèmes opératoires.

CONCLUSION GENERALE

Les perspectives à long terme concernent tout d'abord une étude de la rétention liquide pour compléter la détermination du comportement hydrodynamique des TS. La rétention liquide est un troisième facteur permettant de caractériser un garnissage en terme de capacité avec la perte de charge et la vitesse à l'engorgement. Elle doit être mesurée expérimentalement dans les TS afin de développer des corrélations évaluant cette caractéristique. Une caractérisation de l'encrassement du garnissage TS doit être également réalisée. Ensuite, des études sur l'écoulement des fluides dans ces structures 3D peuvent être établies afin de valider l'objet en termes d'écoulement des fluides par une simulation CFD. Enfin, une modification de la morphologie des structures TS peut être effectuée pour fabriquer des nouveaux garnissages à base de fils de section non-cylindrique. Des nouveaux internes de colonnes peuvent être aussi créés en se basant sur la géométrie des surfaces minimales gyroïdes et des surfaces minimales Primitives et Diamants de Schwarz.

– *Pour la deuxième application, les rubans hélicoïdaux :*

A l'issue des travaux d'évaluation de mélange, des nouvelles perspectives peuvent être proposées. Des corrélations permettant de prédire les performances des internes hélicoïdaux peuvent être développées via l'analyse dimensionnelle. L'objectif final est d'établir un lien entre les propriétés d'usage et les caractéristiques géométrique pour optimiser morphologiquement ces structures complexes. Des mesures de distribution de temps de séjour peuvent être également réalisées. Les internes fabriqués peuvent aussi être comparés avec d'autres géométries d'internes (ex : COBR à constriction périodique lisse).

L'une des perspectives intéressantes est d'étudier la géométrie hélicoïdale pour des applications liquide-liquide ou solide-liquide (ex : cristallisation et polymérisation) ou réactives. De plus, des nouvelles configurations en double ruban hélicoïdal peuvent être imprimées en 3D et testées expérimentalement. Ce type d'internes a été examiné par Mazubert (2014) à travers des simulations numériques. Finalement, des études sur l'écoulement des fluides dans les internes déjà fabriqués (et ayant des paramètres géométriques intéressants) peuvent être aussi établies afin de valider les structures en termes d'écoulement des fluides par une simulation CFD.

– *Pour d'autres applications en utilisant la fabrication additive :*

La méthodologie de travail développée dans cette thèse peut être aussi appliquée à d'autres types de structures complexes utilisées pour des applications en catalyse et en transfert thermique. A titre d'exemple, des nouveaux supports de catalyseurs ainsi que des garnissages structurés catalytiques peuvent être imprimés en 3D, testés, et caractérisés. Des échangeurs de chaleur peuvent être aussi fabriqués en se basant sur la géométrie fractale, par exemple.

Annexes

Annexe A : Propagation des incertitudes pour l'erreur absolue de ε

Pour les mesures expérimentales du taux de vide, une formule pour évaluer l'erreur absolue est proposée en considérant ces erreurs absolues :

- $\Delta m_1 = 0,00001\text{kg}$
- $\Delta D_{\text{gar}} = \Delta H = 0,0005\text{m}$
- $\Delta \rho = 300 \text{ kg/m}^3$ pour Inox316L, 30 kg/m^3 pour PA

L'erreur absolue de la masse m_1 , Δm_1 correspond à l'erreur de la balance, ΔH et ΔD_{gar} correspondent aux erreurs des mesures du diamètre et la hauteur de chaque garnissage tandis que $\Delta \rho$ présente l'erreur absolue de la masse volumique.

Puisque la formule explicite du taux de vide, noté ε est la suivante :

$$\varepsilon = 1 - \frac{m_1}{\rho \pi \frac{D_{\text{gar}}^2}{4} H} \quad (\text{A.1})$$

La formule de l'erreur absolue en appliquant la loi de propagation des incertitudes est donc :

$$\Delta \varepsilon = \frac{1}{\rho \left(\pi \frac{D_{\text{gar}}^2}{4} H \right)} \left(\Delta m_1 + \frac{m_1 \frac{\pi}{4} (\Delta \rho D_{\text{gar}}^2 H + \Delta H \rho D_{\text{gar}}^2 + 2 D_{\text{gar}} \Delta D_{\text{gar}} H \rho)}{\rho \left(\pi \frac{D_{\text{gar}}^2}{4} H \right)} \right) \quad (\text{A.2})$$

Annexe B: Photo des pilotes au LGC



Figure B.1 : Photo du pilote pour les essais hydrodynamiques



Figure B.2 : Photo du pilote de mesure de la HEPT

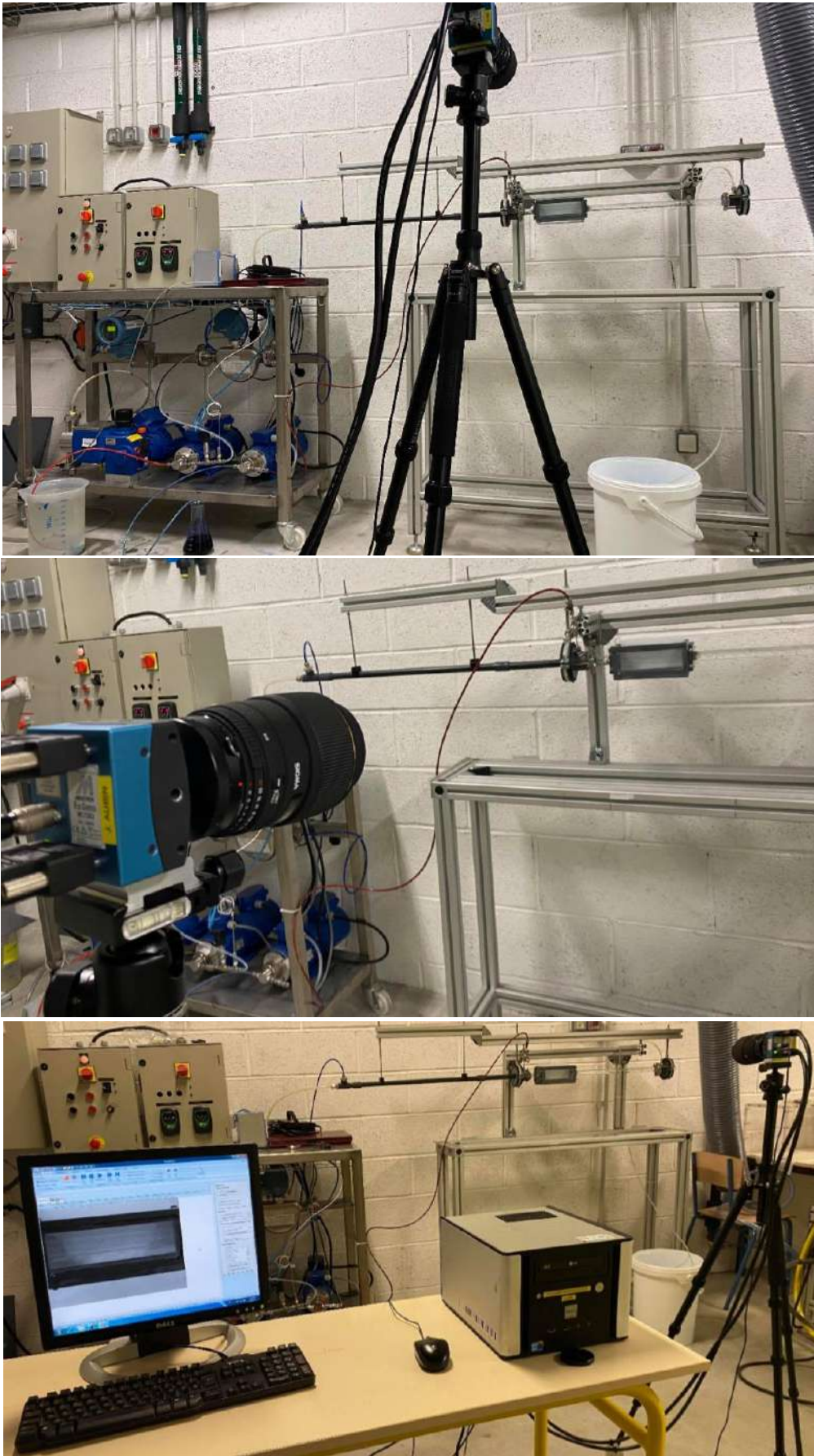


Figure B.3 : Photos du dispositif expérimental : réacteur oscillatoire continu + caméra rapide

Annexe C : Le code de Matlab adopté pour le traitement des données brutes de la perte de charge

```

function [valeur_xls]
traitement_DP_MODIF(filename, sheet, xlRange, windowSize, tlim)
[valeur_xls] = traitement_DP_MODIF('ts-pa-2.5-89-
164.xlsx', 1, 'C5:D4727', 70, 30); % DPSEC
close all
DP = xlsread(filename, sheet, xlRange); % données Brute DP
ub=1.96;
lb=-1.96;

% moyenne fenêtre glissée y -----
b = (1/windowSize)*ones(1, windowSize);
a = 1;
y = filter(b, a, DP);
for i=1:1:size(DP,1)
    if i-windowSize<1
        y2(i)=mean(DP(1:i,2));
    else
        y2(i)=mean(DP(i-windowSize:i,2));
    end
end
end

y2=[DP(:,1), y2'];

% mediane par fenêtre glissée M -----
for i=1:1:size(DP,1)
    if i-windowSize<1
        M(i)=median(DP(1:i,2));
    else
        M(i)=median(DP(i-windowSize:i,2));
    end
end
end
M=[DP(:,1), M'];

%test de student-----
w=windowSize;
for i = w:1:size(DP,1)-w
    s=std(DP(i-w+1:i+w,2));
    t_1(i)=(y(i,2)-y(i+w,2))/(s*sqrt(2/w));
    t_2(i)=(M(i,2)-M(i+w,2))/(s*sqrt(2/w));
end
for i=1:1:w-1
    t_1(i)=0;
    t_2(i)=0;
end
t_1=[t_1 0*ones(1,w)];
t_2=[t_2 0*ones(1,w)];
DP_t=[0 0];
N=1;
for i=1:1:size(t_1,2)
    if t_2(i)>lb
        DP_t=[DP_t; DP(i,:)];
    end
end
DP_t(1,:)=[];
for i=2:1:size(DP_t,1)
    DP_t(i,3)=DP_t(i,1)-DP_t(i-1,1);
end
end

```

Figure C.1 : Le code adopté pour le traitement des données de la perte de charge

```

for i=1:1:size(DP_t,1)
    if DP_t(i,3)>tlim
        Pos(N)=i;
        N=N+1;
    end
end
for i=1:1:N
    if i==1
        v=DP_t(1:Pos(i)-1,:);
        debit{i}=v;

    elseif i==N
        v=DP_t(Pos(i-1):end,:);
        debit{i}=v;
    else
        v=DP_t(Pos(i-1):Pos(i)-1,:);
        debit{i}=v;
    end
end

% moyenne avec différent nombre de valeur
for i=1:1:N
    for n=25:25:length(debit{1,i}(:,2))
        temps(n/25,i)=debit{1,i}(n,1);
        Moyenne(n/25,i)=mean(debit{1,i}(1:n,2));
        Mediane(n/25,i)=median(debit{1,i}(1:n,2));
    end
end
summoyenne=sum(Moyenne,1);
a=1;
for i=1:1:length(summoyenne)
    if summoyenne(i)==0
        a=[a,i];
    end
end
a(1)=[];
temps(:,a)=[];
Moyenne(:,a)=[];
Mediane(:,a)=[];
N=size(Moyenne,2);

% fenêtre mobile sur dernier débit d'air
w_1=25; % taille fenetre fixe
t_mobile_1=zeros(1,length(debit{1,N}(:,2))-w_1);
for i=1:1:length(debit{1,N}(:,2))-w_1
    t_mobile_1(i)=(mean(debit{1,N}(1:i,2))-
mean(debit{1,N}(i+1:i+w_1,2)))/(std(debit{1,N}(1:i+w_1,2))*sqrt(2/(i+w_1)));
    t_mobile_2(i)=(median(debit{1,N}(1:i,2))-
median(debit{1,N}(i+1:i+w_1,2)))/(std(debit{1,N}(1:i+w_1,2))*sqrt(2/(i+w_1)));
end
for i=1:1:N
    valeur_xls(i,1)=temps(find(Mediane(:,i), 1, 'last'),i);
    valeur_xls(i,2)=Mediane(find(Mediane(:,i), 1, 'last'),i);
end
end
end

```

Figure C.2 : Le code adopté pour le traitement des données de la perte de charge

Annexe D : Estimation des paramètres avec la régression multilinéaire

Avec le modèle :

$$y = \alpha p^\beta q^\gamma r^\delta + \varepsilon \quad (\text{D.1})$$

On a des données y_i, p_i, q_i, r_i , pour $i = 1$ à n . Le modèle ci-dessus est non linéaire. En prenant le logarithme du modèle, il devient linéaire avec :

$$z = \text{Ln}(y) = \text{Ln}(\alpha) + \beta \text{Ln}(p) + \gamma \text{Ln}(q) + \delta \text{Ln}(r) \quad (\text{D.2})$$

Dans ce cas, on peut alors utiliser une méthode de régression multilinéaire pour résoudre le problème des moindres carrés.

En posant :

$$X = \begin{pmatrix} 1 & \text{Ln}(p_1) & \text{Ln}(q_1) & \text{Ln}(r_1) \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ 1 & \text{Ln}(p_n) & \text{Ln}(q_n) & \text{Ln}(r_n) \end{pmatrix} \quad (\text{D.3})$$

$$Y = \begin{pmatrix} \text{Ln}(y_1) \\ \dots \\ \text{Ln}(y_n) \end{pmatrix} \quad (\text{D.4})$$

La solution est :

$$\hat{\eta} = (X^t X)^{-1} X^t Y \quad (\text{D.5})$$

avec $\hat{\eta} = [\text{Ln}(\alpha) \quad \beta \quad \gamma \quad \delta]^t$

Le code Matlab utilisé pour ce calcul est affiché en Figure D.1.

```
% Lecture des données à partir d'Excel
[Donnees] = xlsread('Analyse_Dimensionnelle.xlsx',
    'Correlation 1', 'B2:G240');

%Régression multilinéaire
Y = log(Donnees(:,4)) % Ln(Hg)
n = length(Y)
X = [ones(n,1), log(Donnees(:,1:3))]
Coeff = inv(X'*X)*X'*Y
```

Figure D.1 : Le code adopté pour la régression multilinéaire

Annexe E : La géométrie des Tetrasplines

Pour simplifier la géométrie, le TS est assimilé à un tétra sans une fonction spline (en négligeant les intersections). Cette hypothèse nous aide à calculer le taux de vide et la surface spécifique en utilisant deux variables seulement : le diamètre d_{fil} et la longueur l_{fil} . Les détails des calculs sont présentés ci-dessous.

Soit :

- x_1 : la distance entre la base et le milieu du tétra régulier
- x_2 : la distance entre la base et le milieu du tétra irrégulier
- h_1 : la hauteur du tétra régulier
- h_2 : la hauteur du tétra irrégulier
- θ_1 : l'angle de base du tétra régulier = 30°
- θ_2 : l'angle de base du tétra irrégulier = 40°
- a : la distance entre deux brins d'un tétra régulier et irrégulier
- l_{fil} : la longueur des fils ou brin (brin régulier = irrégulier)
- L_{fil} : $l_{fil}/2$
- d_{fil} : le diamètre des fils
- V_{elem_1} : le volume élémentaire occupé par une maille élémentaire d'un tétra régulier
- V_{elem_2} : le volume élémentaire occupé par une maille élémentaire d'un tétra irrégulier
- V_{elem} : le volume élémentaire total
- V_{mat_1} : le volume de matière pour un tétra régulier
- V_{mat_2} : le volume de matière pour un tétra irrégulier
- V_{mat} : le volume de matière total
- V_{mat_c} : le volume de matière corrigé
- S_{mat_1} : la surface de matière pour un tétra régulier
- S_{mat_2} : la surface de matière pour un tétra irrégulier
- S_{mat} : la surface de matière totale
- S_{mat_c} : la surface de matière corrigée
- l_3 : la longueur des brins imposée par le tétra régulier
- ε : taux de vide du TS
- $S_{géo}$: surface spécifique du TS
- ε_c : taux de vide corrigé
- $S_{géo_c}$: surface spécifique corrigée

Les étapes du calcul :

I. Pour un tétra régulier :

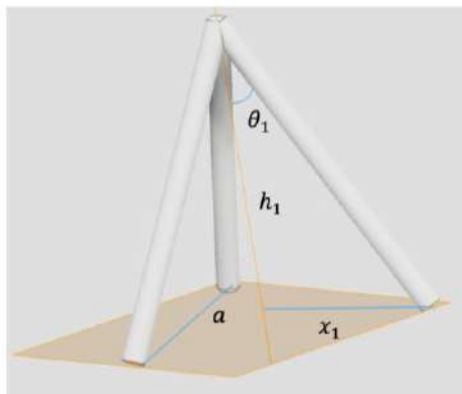


Figure E.1 : La géométrie d'un tétra régulier

- x_1 :

$$\left(1 + \frac{1}{\tan^2 \theta_1}\right) \cdot (x_1')^2 + \frac{L_{fil}}{2 \tan \theta_1} \cdot (x_1') - \frac{15}{16} L_{fil}^2 = 0 \quad (E.1)$$

$$\Delta = \frac{L_{fil}^2}{4 \tan^2 \theta_1} + \frac{15}{4} L_{fil}^2 \left(1 + \frac{1}{\tan^2 \theta_1}\right) \quad (E.2)$$

$$x_1' = \frac{\sqrt{\Delta} - \frac{L_{fil}}{2 \tan \theta_1}}{2 \left(1 + \frac{1}{\tan^2 \theta_1}\right)} \quad (E.3)$$

$$x_1 = 2 (x_1') \quad (E.4)$$

- a :

$$a = 2x_1 \sin 60^\circ \quad (E.5)$$

- h_1 :

$$h_1 = l_{fil} \cos \left(\sin^{-1} \left(\frac{x_1'}{L_{fil}} \right) \right) \quad (E.6)$$

- V_{elem1} :

$$V_{elem1} = a^2 h_1 \sqrt{3}/2 \quad (E.7)$$

- V_{mat1} et S_{mat1} (en considérant que le tétra est composé de trois cylindres):

$$V_{mat1} = 3\pi l_{fil} \left(\frac{d_{fil}}{2} \right)^2 \quad (E.8)$$

$$S_{mat1} = 3\pi d_{fil} l_{fil} \quad (E.9)$$

II. Pour un tétra irrégulier :

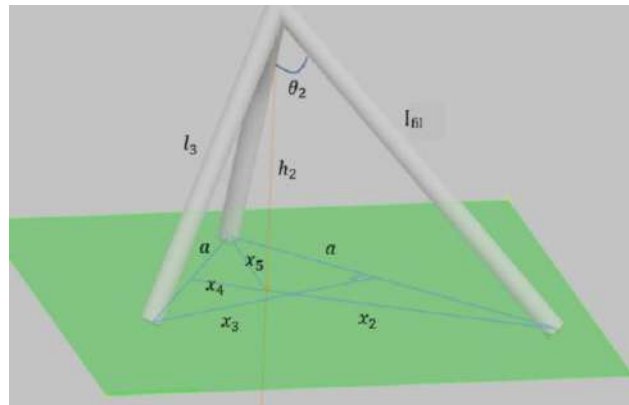


Figure E.2 : La géométrie d'un tétra irrégulier

- (x_2') , x_2 , a , h_2 et V_{elem2} : Ils sont calculés en utilisant les mêmes équations listés avant mais en remplaçant Θ_1 par Θ_2

- l_3 :

$$x_3 = a \cos 30^\circ \quad (\text{E.10})$$

$$x_4 = x_3 - x_2 \quad (\text{E.11})$$

$$x_5 = \frac{a}{2 \cos \left(\tan^{-1} \frac{2x_4}{a} \right)} \quad (\text{E.12})$$

$$l_3 = \frac{h_2}{\cos \left(\tan^{-1} \frac{x_5}{h_2} \right)} \quad (\text{E.13})$$

- V_{mat2} et S_{mat2} :

$$V_{\text{mat2}} = \pi \left(\frac{d_{\text{fil}}}{2} \right)^2 (l_{\text{fil}} + 2l_3) \quad (\text{E.14})$$

$$S_{\text{mat2}} = \pi d_{\text{fil}} (l_{\text{fil}} + 2l_3) \quad (\text{E.15})$$

III. Pour le garnissage TS :

- $V_{\text{elem}}, V_{\text{mat}}$ et S_{mat} :

$$V_{\text{elem}} = V_{\text{elem1}} + V_{\text{elem2}} \quad (\text{E.16})$$

$$V_{\text{mat}} = V_{\text{mat1}} + V_{\text{mat2}} \quad (\text{E.17})$$

$$S_{\text{mat}} = S_{\text{mat1}} + S_{\text{mat2}} \quad (\text{E.18})$$

- V_{mat_c} et S_{mat_c} :

$$V_{\text{mat}_c} = V_{\text{mat}} (1 - 0,175 d_{\text{fil}}^{0,5}) \quad (\text{E.19})$$

$$S_{\text{mat}_c} = S_{\text{mat}} (1 - 0,2225 d_{\text{fil}}^{0,5}) \quad (\text{E.20})$$

Les expressions finales du taux de vide et de la surface géométrique d'un garnissage TS seront alors :

- ε_c :

$$\varepsilon_c = 1 - \frac{V_{\text{mat}_c}}{V_{\text{elem}}} \quad (\text{E.21})$$

- $S_{\text{géo}_c}$ en m^2/m^3 :

$$S_{\text{géo}_c} = 1000 \left(\frac{S_{\text{mat}_c}}{V_{\text{elem}}} \right) \quad (\text{E.22})$$

Annexe F : Analyse dimensionnelle pour prédire les différentes corrélations

F.1 Corrélation de la perte de charge d'un garnissage à sec

1. Choix de la variable cible : $\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{\text{sec}}$

Liste des grandeurs physiques : vitesse du gaz (U_{gaz}), taux de vide (ε), diamètre hydraulique gazeux (d_{hg}), longueur du fil (l_{fil}), μ_{gaz} , et ρ_{gaz}

2. Matrice aux dimensions :

	U_{gaz}	ε	d_{hg}	l_{fil}	μ_{gaz}	ρ_{gaz}	$\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{\text{sec}}$
d1 :Masse	0	0	0	0	1	1	1
d2 : Longueur	1	0	1	1	-1	-3	-2
d3 : Temps	-1	0	0	0	-1	0	-2

3. Jeu de variables répétées : μ_{gaz} , ρ_{gaz} , d_{hg}

La détermination des nombres sans dimension :

$$\pi_1 = \frac{U_{\text{gaz}} \rho_{\text{gaz}} d_{\text{hg}}}{\varepsilon \mu_{\text{gaz}}} = \text{Re}_g ; \pi_2 = \frac{l_{\text{fil}}}{d_{\text{hg}}} ; \pi_3 = \varepsilon ; \pi_{\text{cible}} = \frac{\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_{\text{sec}} \rho_{\text{gaz}} d_{\text{hg}}^3}{\mu_{\text{gaz}}^2} = \text{Hg}_{\text{sec}}$$

4. Réarrangements des nombres sans dimension :

$$\text{Hg}_{\text{sec}} = C (\text{Re}_g)^a \left(\frac{l_{\text{fil}}}{d_{\text{hg}}}\right)^b \varepsilon^c \quad (\text{F.1})$$

Tableau F.1 : Les valeurs de la constante et des exposants utilisées dans la corrélation de la perte de charge des garnissages à sec

Constante et exposants	Valeurs	Constante et exposants	Valeurs
C	0,06	a	2
b	-2	c	-10

En ajoutant les valeurs de la constante et des exposants dans Eq. F.1, la forme finale de la corrélation permettant de prédire la perte de charge pour un système monophasique air est obtenue (Eq. III.2).

F.2 Corrélation de la perte de charge pour un système diphasique à contre-courant

1. Choix de la variable cible : $\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_h$

Liste des grandeurs physiques : vitesse du gaz (U_{gaz}), vitesse du liquide (U_{liq}), taux de vide (ε), diamètre hydraulique liquide (d_{h1}), longueur du fil (l_{fil}), μ_{gaz} , ρ_{gaz} , μ_{liq} , et ρ_{liq}

2. Matrice aux dimensions :

	U_{gaz}	ε	d_{h1}	l_{fil}	μ_{gaz}	ρ_{gaz}	$\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_h$
	U_{liq}				μ_{liq}	ρ_{liq}	
d1 : Masse	0	0	0	0	1	1	1
d2 : Longueur	1	0	1	1	-1	-3	-2
d3 : Temps	-1	0	0	0	-1	0	-2

3. Jeu de variables répétées : μ_{liq} , ρ_{liq} , d_{h1}

La détermination des nombres sans dimension :

$$\pi_1 = \frac{U_{\text{liq}} \rho_{\text{liq}} d_{h1}}{\mu_{\text{liq}}} = Re_1 ; \pi_2 = \frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}} ; \pi_3 = \frac{\mu_{\text{gaz}}}{\mu_{\text{liq}}} ; \pi_4 = \frac{l_{\text{fil}}}{d_{h1}} ; \pi_5 = \varepsilon ; \pi_6 = \frac{U_{\text{gaz}}}{U_{\text{liq}}}$$

$$\pi_{\text{cible}} = \frac{\left(\frac{\Delta P}{\Delta Z}\right)_h \rho_{\text{liq}} d_{h1}^3}{\mu_{\text{liq}}^2} = Hg_h$$

4. Réarrangements des nombres sans dimension :

$$Hg_h = 2,07 Re_1^a \left(\frac{\rho_{\text{gaz}}}{\rho_{\text{liq}}}\right)^b \left(\frac{\mu_{\text{gaz}}}{\mu_{\text{liq}}}\right)^c \left(\frac{d_{h1}}{l_{\text{fil}}}\right)^d \varepsilon^e \left(\frac{U_{\text{gaz}}}{U_{\text{liq}}}\right)^f \quad (\text{F.2})$$

Tableau F.2 : Les valeurs de la constante et des exposants utilisées dans la corrélation de la perte de charge

Constante et exposants	Valeurs	Constante et exposants	Valeurs	Constante et exposants	Valeurs	Constante et exposants	Valeurs
C	2,07	a	1,85	b	0,8	c	0,58
d	-1,04	e	-7,8	f	1,82		

En ajoutant les valeurs de la constante et des exposants dans Eq. F.2, la forme finale de la corrélation permettant de prédire la perte de charge pour un système diphasique avant et après le point de charge est obtenue (Eq. III.8) (Eq. III.9).

F.3 Corrélation de la vitesse à l'engorgement

1. *Choix de la variable cible* : U_F

Liste des grandeurs physiques : vitesse du liquide (U_{liq}), taux de vide (ε), diamètre hydraulique liquide (d_{h1}), longueur du fil (l_{fil}), μ_{gaz} , ρ_{gaz} , μ_{liq} , et ρ_{liq}

2. *Matrice aux dimensions* :

	U_{liq}	ρ_{gaz}	ρ_{liq}	μ_{gaz}	μ_{liq}	l_{fil}	ε	d_{h1}	U_F
d1 : Masse	0	1	1	1	1	0	0	0	0
d2 : Longueur	1	-3	-3	-1	-1	1	0	1	1
d3 : Temps	-1	0	0	-1	-1	0	0	0	-1

3. *Jeu de variables répétées* : μ_{liq} , ρ_{liq} , d_{h1}

La détermination des nombres sans dimension :

$$\pi_1 = \frac{U_{liq} \rho_{liq} d_{h1}}{\mu_{liq}} = Re_1; \pi_2 = \frac{\rho_{gaz}}{\rho_{liq}}; \pi_3 = \frac{\mu_{gaz}}{\mu_{liq}}; \pi_4 = \varepsilon; \pi_5 = \frac{l_{fil}}{d_{h1}};$$

$$\pi_{cible} = \frac{U_F d_{h1} \rho_{liq}}{\mu_{liq}}$$

4. *Réarrangements des nombres sans dimension* :

$$\pi_{cible} = C (Re_1)^a \left(\frac{\rho_{gaz}}{\rho_{liq}}\right)^b \left(\frac{\mu_{gaz}}{\mu_{liq}}\right)^c \varepsilon^d \left(\frac{l_{fil}}{d_{h1}}\right)^e \quad (F.3)$$

Tableau F.3 : Les valeurs de la constante et des exposants utilisées dans la corrélation de la vitesse à l'engorgement

Constante et exposants	Valeurs	Constante et exposants	Valeurs	Constante et exposants	Valeurs
C	403,37	a	0,4	b	-0,2
c	0,5	d	2,76	e	0,28

En combinant l'expression de π_{cible} avec Eq. F.3 et en considérant que $Re_{gF} = \frac{U_F \rho_{gaz} d_{hg}}{\varepsilon \mu_{gaz}}$, la forme finale de la corrélation permettant de prédire la vitesse à l'engorgement sous forme d'un nombre de Reynolds du gaz à l'engorgement est obtenue (Eq. III.19).

F.4 Corrélation de la HEPT

1. Choix de la variable cible : HEPT

Liste des grandeurs physiques : surface spécifique ($S_{géo}$), taux de vide (ε), diamètre du fil (d_{fil}), longueur du fil (l_{fil}), μ_{gaz} , ρ_{gaz} , μ_{liq} , et ρ_{liq}

2. Matrice aux dimensions :

	$S_{géo}$	ρ_{gaz}	ρ_{liq}	μ_{gaz}	μ_{liq}	l_{fil}	d_{fil}	HEPT
d1 :Masse	0	1	1	1	1	0	0	0
d2 : Longueur	-1	-3	-3	-1	-1	1	1	1
d3 : Temps	0	0	0	-1	-1	0	0	0

3. Jeu de variables répétées : μ_{liq} , ρ_{liq} , d_{fil}

La détermination des nombres sans dimension :

$$\pi_1 = S_{géo} d_{fil}; \pi_2 = \frac{\rho_{gaz}}{\rho_{liq}}; \pi_3 = \frac{\mu_{gaz}}{\mu_{liq}}; \pi_4 = \frac{l_{fil}}{d_{fil}}; \pi_{cible} = \frac{HEPT}{d_{fil}}$$

4. Réarrangements des nombres sans dimension :

$$\pi_{cible} = C (S_{géo} d_{fil})^a \left(\frac{\rho_{gaz}}{\rho_{liq}}\right)^b \left(\frac{\mu_{gaz}}{\mu_{liq}}\right)^c \left(\frac{l_{fil}}{d_{fil}}\right)^d \quad (F.4)$$

Tableau F.4: Les valeurs de la constante et des exposants utilisées dans la corrélation de la HEPT

Constante et exposants	Valeurs
C	0,3445
a	-4,24
b	-2,47
c	-0,1
d	-5,82

En écrivant $\pi_{cible} = HEPT/d_{fil}$ dans Eq. F.4 et après réarrangement, la forme finale de la corrélation permettant de prédire la HEPT d'un garnissage est obtenue (Eq. III.20).

Annexe G : Les diamètres hydrauliques du nombre de Reynolds gaz et liquide

Les diamètres hydrauliques gaz et liquide, notés respectivement d_{hg} et d_{hl} , sont indispensables pour le calcul des nombres de Reynolds qui interviendront dans nos corrélations des performances hydrodynamiques. Les valeurs des diamètres hydrauliques d_{hg} et d_{hl} ainsi que les valeurs des épaisseurs du film liquide calculées par Nusselt pour les systèmes eau et eau/glycérol sont données dans Tableau G.1 et G.2.

Tableau G.1 : Les diamètres hydrauliques du Reynolds gaz pour les 15 TS

Garnissage TS	d_{hg} (mm)
TS_PA_1,5_89_281	12,68
TS_PA_1,5_90_238	16,31
TS_PA_1,5_91_225	17,14
TS_PA_1,5_95_139	28,46
TS_PA_1_95_205	23,42
TS_PA_1,75_91_196	19,33
TS_PA_2,25_89_182	18,52
TS_PA_2,75_89_148	22,99
TS_PA_2,5_89_164	21,57
TS_PA_1,5_92_205	18,56
TS_PA_1,25_93_207	21,68
TS_PA_2,25_91_150	24,57
TS_PA_2_91_169	22,24
TS_In_1,5_92_205	18,45
TS_In_2,25_89_182	19,05

Tableau G.2 : Les diamètres hydrauliques et les épaisseurs en fonction du débit liquide

Garnissage TS	Débit liquide ($m^3.m^{-2}.h^{-1}$)	Liquide	e - Nusselt (m)	d_{hl} (mm)
TS_PA_1,5_95_139	9,15	Eau	$1,66.10^{-4}$	$7,48.10^{-4}$
TS_PA_1,5_95_139	15,25		$1,94.10^{-4}$	$8,93.10^{-4}$
TS_PA_1,5_95_139	21,36		$2,16.10^{-4}$	$1,00.10^{-3}$
TS_PA_1,5_89_281	9,15		$1,30.10^{-4}$	$5,74.10^{-4}$
TS_PA_1,5_89_281	15,25		$1,53.10^{-4}$	$6,84.10^{-4}$
TS_PA_1,5_89_281	21,36		$1,70.10^{-4}$	$7,68.10^{-4}$
TS_PA_1,25_93_207	9,15		$1,52.10^{-4}$	$7,12.10^{-4}$
TS_PA_1,25_93_207	15,25		$1,77.10^{-4}$	$8,52.10^{-4}$
TS_PA_1,25_93_207	21,36		$1,96.10^{-4}$	$9,6.10^{-4}$
TS_PA_1,5_92_205	9,15		$1,45.10^{-4}$	$6,47.10^{-4}$
TS_PA_1,5_92_205	15,25		$1,70.10^{-4}$	$7,72.10^{-4}$
TS_PA_1,5_92_205	21,36		$1,89.10^{-4}$	$8,68.10^{-4}$
TS_PA_1,5_92_205	12,20		$1,59.10^{-4}$	$7,15.10^{-4}$
TS_PA_1,5_92_205	25,93		$2,01.10^{-4}$	$9,28.10^{-4}$

Annexes

Tableau G.2 : Les diamètres hydrauliques et les épaisseurs en fonction du débit liquide (suite)

Garnissage TS	Débit liquide (m ³ .m ⁻² .h ⁻¹)	Liquide	e - Nusselt (m)	d _{h1} (mm)
TS_PA_2_91_169	9,15	Eau	1,57.10 ⁻⁴	6,86.10 ⁻⁴
TS_PA_2_91_169	15,25		1,84.10 ⁻⁴	8,17.10 ⁻⁴
TS_PA_2_91_169	21,36		2,05.10 ⁻⁴	9,18.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_91_225	9,15		1,43.10 ⁻⁴	6,37.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_91_225	12,20		1,57.10 ⁻⁴	7,04.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_91_225	25,93		1,98.10 ⁻⁴	9,14.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_91_225	15,25		1,56.10 ⁻⁴	8,01.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_91_225	21,36		1,75.10 ⁻⁴	8,79.10 ⁻⁴
TS_PA_2,25_91_150	9,15		1,62.10 ⁻⁴	6,98.10 ⁻⁴
TS_PA_2,25_91_150	15,25		1,90.10 ⁻⁴	8,32.10 ⁻⁴
TS_PA_2,25_91_150	21,36		2,12.10 ⁻⁴	9,33.10 ⁻⁴
TS_PA_1,75_91_196	9,15		1,49.10 ⁻⁴	6,58.10 ⁻⁴
TS_PA_1,75_91_196	15,25		1,75.10 ⁻⁴	7,84.10 ⁻⁴
TS_PA_1,75_91_196	21,36		1,95.10 ⁻⁴	8,81.10 ⁻⁴
TS_PA_1,75_91_196	12,20		1,64.10 ⁻⁴	7,26.10 ⁻⁴
TS_PA_2,25_89_182	10,98		1,61.10 ⁻⁴	6,93.10 ⁻⁴
TS_PA_2,25_89_182	15,25		1,79.10 ⁻⁴	7,75.10 ⁻⁴
TS_PA_2,25_89_182	19,53		1,93.10 ⁻⁴	8,7.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_90_238	9,15		1,40.10 ⁻⁴	6,25.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_90_238	15,25		1,64.10 ⁻⁴	7,46.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_90_238	21,36		1,82.10 ⁻⁴	8,39.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_90_238	12,20		1,53.10 ⁻⁴	6,91.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_90_238	25,93		1,93.10 ⁻⁴	8,98.10 ⁻⁴
TS_PA_2,5_89_164	9,15		1,60.10 ⁻⁴	6,84.10 ⁻⁴
TS_PA_2,5_89_164	15,25		1,88.10 ⁻⁴	8,13.10 ⁻⁴
TS_PA_2,5_89_164	21,36		2,10.10 ⁻⁴	9,12.10 ⁻⁴
TS_PA_2,75_89_148	9,15		1,64.10 ⁻⁴	6,98.10 ⁻⁴
TS_PA_2,75_89_148	15,25		1,93.10 ⁻⁴	8,3.10 ⁻⁴
TS_PA_2,75_89_148	21,36		2,15.10 ⁻⁴	9,31.10 ⁻⁴
TS_In_1,5_92_205	9,15		1,47.10 ⁻⁴	6,5.10 ⁻⁴
TS_In_1,5_92_205	15,25		1,73.10 ⁻⁴	7,75.10 ⁻⁴
TS_In_1,5_92_205	21,36		1,92.10 ⁻⁴	8,71.10 ⁻⁴
TS_In_1,5_92_205	12,20		1,61.10 ⁻⁴	7,18.10 ⁻⁴
TS_In_1,5_92_205	25,93	2,03.10 ⁻⁴	9,31.10 ⁻⁴	
TS_In_2,25_89_182	6,10	1,35.10 ⁻⁴	5,72.10 ⁻⁴	
TS_In_2,25_89_182	9,15	1,53.10 ⁻⁴	6,57.10 ⁻⁴	
TS_In_2,25_89_182	12,20	1,68.10 ⁻⁴	7,24.10 ⁻⁴	
TS_In_2,25_89_182	15,25	1,80.10 ⁻⁴	7,82.10 ⁻⁴	
TS_PA_2_91_169	9,15	Eau et glycérol	1,87.10 ⁻⁴	8,31.10 ⁻⁴
TS_PA_2_91_169	15,25		2,19.10 ⁻⁴	9,91.10 ⁻⁴
TS_PA_2_91_169	21,36		2,44.10 ⁻⁴	1,11.10 ⁻³
TS_PA_1,5_92_205	9,15		1,73.10 ⁻⁴	7,85.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_92_205	15,25		2,03.10 ⁻⁴	9,37.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_92_205	21,36		2,25.10 ⁻⁴	1,05.10 ⁻³

Annexes

Tableau G.2 : Les diamètres hydrauliques et les épaisseurs en fonction du débit liquide (suite)

Garnissage TS	Débit liquide (m ³ .m ⁻² .h ⁻¹)	Liquide	e - Nusselt (m)	d _{h1} (mm)
TS_PA_1,5_90_238	9,15	Eau et glycérol	1,66.10 ⁻⁴	7,59.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_90_238	15,25		1,95.10 ⁻⁴	9,07.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_90_238	21,36		2,16.10 ⁻⁴	1,02.10 ⁻³
TS_PA_1,5_89_281	9,15		1,55.10 ⁻⁴	6,95.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_89_281	15,25		1,82.10 ⁻⁴	8,3.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_89_281	21,36		2,02.10 ⁻⁴	9,33.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_95_139	9,15		1,97.10 ⁻⁴	9,08.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_95_139	15,25		2,31.10 ⁻⁴	1,09.10 ⁻³
TS_PA_1,5_95_139	21,36		2,56.10 ⁻⁴	1,22.10 ⁻³
TS_PA_2,25_89_182	9,15		1,82.10 ⁻⁴	7,88.10 ⁻⁴
TS_PA_2,25_89_182	15,25		2,13.10 ⁻⁴	9,39.10 ⁻⁴
TS_PA_2,25_89_182	21,36		2,37.10 ⁻⁴	1,05.10 ⁻³
TS_PA_2,75_89_148	9,15		1,96.10 ⁻⁴	8,44.10 ⁻⁴
TS_PA_2,75_89_148	15,25		2,31.10 ⁻⁴	1.10 ⁻³
TS_PA_2,75_89_148	21,36		2,57.10 ⁻⁴	1,13.10 ⁻³
TS_PA_2,25_91_150	9,15		1,93.10 ⁻⁴	8,45.10 ⁻⁴
TS_PA_2,25_91_150	15,25		2,27.10 ⁻⁴	1,01.10 ⁻³
TS_PA_2,25_91_150	21,36		2,52.10 ⁻⁴	1,13.10 ⁻³
TS_PA_2,5_89_164	9,15		1,91.10 ⁻⁴	8,27.10 ⁻⁴
TS_PA_2,5_89_164	15,25		2,25.10 ⁻⁴	9,84.10 ⁻⁴
TS_PA_2,5_89_164	21,36		2,5.10 ⁻⁴	1,11.10 ⁻³
TS_PA_1,75_91_196	9,15		1,78.10 ⁻⁴	7,97.10 ⁻⁴
TS_PA_1,75_91_196	15,25		2,09.10 ⁻⁴	9,51.10 ⁻⁴
TS_PA_1,75_91_196	21,36		2,17.10 ⁻⁴	9,91.10 ⁻⁴
TS_PA_1,25_93_207	9,15		1,8.10 ⁻⁴	8,67.10 ⁻⁴
TS_PA_1,25_93_207	15,25		2,1.10 ⁻⁴	1,04.10 ⁻³
TS_PA_1,25_93_207	21,36		2,32.10 ⁻⁴	1,17.10 ⁻³
TS_PA_1,5_91_225	9,15		1,7.10 ⁻⁴	7,73.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_91_225	15,25		1,99.10 ⁻⁴	9,23.10 ⁻⁴
TS_PA_1,5_91_225	21,36		2,21.10 ⁻⁴	1,04.10 ⁻³
TS_In_1,5_92_205	9,15		1,75.10 ⁻⁴	7,88.10 ⁻⁴
TS_In_1,5_92_205	15,25		2,05.10 ⁻⁴	9,4.10 ⁻⁴
TS_In_1,5_92_205	21,36		2,28.10 ⁻⁴	1,06.10 ⁻³
TS_In_2,25_89_182	9,15		1,83.10 ⁻⁴	7,95.10 ⁻⁴
TS_In_2,25_89_182	15,25		2,13.10 ⁻⁴	9,39.10 ⁻⁴
TS_In_2,25_89_182	21,36		2,39.10 ⁻⁴	1,06.10 ⁻³

Annexe H : Les essais expérimentaux réalisés avec les rubans hélicoïdaux

Tableau H.1 : Les essais expérimentaux réalisés pour la caractérisation du mélange

Interne	Numéro de conditions opératoires	Fraction molaire - glycérol	$d_{\text{hélice}}$ (mm)	Largeur (mm)	Pas (mm)	x_0 (mm)	f (Hz)	Re_{net}	Re_0
A	1	0,175	6,56	1,68	11,75	5,5	1	42	79
A	2	0,175	6,56	1,68	11,75	5,5	1,5	42	119
A	3	0,175	6,56	1,68	11,75	12,5	1	42	180
A	4	0,175	6,56	1,68	11,75	12,5	1,5	42	270
A	5	0,325	6,56	1,68	11,75	12,5	1	11	48
A	6	0,325	6,56	1,68	11,75	12,5	1,5	11	72
B	1	0,175	12,19	1,68	11,75	5,5	1	42	79
B	2	0,175	12,19	1,68	11,75	5,5	1,5	42	119
B	3	0,175	12,19	1,68	11,75	12,5	1	42	180
B	4	0,175	12,19	1,68	11,75	12,5	1,5	42	270
B	5	0,325	12,19	1,68	11,75	12,5	1	11	48
B	6	0,325	12,19	1,68	11,75	12,5	1,5	11	72
C	1	0,175	6,56	3,06	11,75	5,5	1	42	79
C	2	0,175	6,56	3,06	11,75	5,5	1,5	42	119
C	3	0,175	6,56	3,06	11,75	12,5	1	42	180
C	4	0,175	6,56	3,06	11,75	12,5	1,5	42	270
C	5	0,325	6,56	3,06	11,75	12,5	1	11	48
C	6	0,325	6,56	3,06	11,75	12,5	1,5	11	72
D	1	0,175	12,19	3,06	11,75	5,5	1	42	79
D	2	0,175	12,19	3,06	11,75	5,5	1,5	42	119
D	3	0,175	12,19	3,06	11,75	12,5	1	42	180
D	4	0,175	12,19	3,06	11,75	12,5	1,5	42	270
D	5	0,325	12,19	3,06	11,75	12,5	1	11	48
D	6	0,325	12,19	3,06	11,75	12,5	1,5	11	72
E	1	0,175	6,56	1,68	21,25	5,5	1	42	79
E	2	0,175	6,56	1,68	21,25	5,5	1,5	42	119
E	3	0,175	6,56	1,68	21,25	12,5	1	42	180
E	4	0,175	6,56	1,68	21,25	12,5	1,5	42	270
E	5	0,325	6,56	1,68	21,25	12,5	1	11	48
E	6	0,325	6,56	1,68	21,25	12,5	1,5	11	72
F	1	0,175	12,19	1,68	21,25	5,5	1	42	79
F	2	0,175	12,19	1,68	21,25	5,5	1,5	42	119
F	3	0,175	12,19	1,68	21,25	12,5	1	42	180
F	4	0,175	12,19	1,68	21,25	12,5	1,5	42	270
F	5	0,325	12,19	1,68	21,25	12,5	1	11	48
F	6	0,325	12,19	1,68	21,25	12,5	1,5	11	72
H	1	0,175	12,19	3,06	21,25	5,5	1	42	79
H	2	0,175	12,19	3,06	21,25	5,5	1,5	42	119

Annexes

Tableau H.1 : Les essais expérimentaux réalisés pour la caractérisation du mélange (suite)

Interne	Numéro de conditions opératoires	Fraction molaire - glycérol	$d_{\text{hélice}}$ (mm)	Largeur (mm)	Pas (mm)	x_0 (mm)	f (Hz)	Re_{net}	Re_0
H	3	0,175	12,19	3,06	21,25	12,5	1	42	180
H	4	0,175	12,19	3,06	21,25	12,5	1,5	42	270
H	5	0,325	12,19	3,06	21,25	12,5	1	11	48
H	6	0,325	12,19	3,06	21,25	12,5	1,5	11	72
R	1	0,175	14,5	3,75	26	5,5	1	42	79
R	2	0,175	14,5	3,75	26	5,5	1,5	42	119
R	3	0,175	14,5	3,75	26	12,5	1	42	180
R	4	0,175	14,5	3,75	26	12,5	1,5	42	270
R	5	0,325	14,5	3,75	26	12,5	1	11	48
R	6	0,325	14,5	3,75	26	12,5	1,5	11	72
M	1	0,175	9,38	3,75	16,5	5,5	1	42	79
M	2	0,175	9,38	3,75	16,5	5,5	1,5	42	119
M	3	0,175	9,38	3,75	16,5	12,5	1	42	180
M	4	0,175	9,38	3,75	16,5	12,5	1,5	42	270
M	5	0,325	9,38	3,75	16,5	12,5	1	11	48
M	6	0,325	9,38	3,75	16,5	12,5	1,5	11	72
N	1	0,175	9,38	2,37	7	5,5	1	42	79
N	2	0,175	9,38	2,37	7	5,5	1,5	42	119
N	3	0,175	9,38	2,37	7	12,5	1	42	180
N	4	0,175	9,38	2,37	7	12,5	1,5	42	270
N	5	0,325	9,38	2,37	7	12,5	1	11	48
N	6	0,325	9,38	2,37	7	12,5	1,5	11	72
O	1	0,175	9,38	2,37	26	5,5	1	42	79
O	2	0,175	9,38	2,37	26	5,5	1,5	42	119
O	3	0,175	9,38	2,37	26	12,5	1	42	180
O	4	0,175	9,38	2,37	26	12,5	1,5	42	270
O	5	0,325	9,38	2,37	26	12,5	1	11	48
O	6	0,325	9,38	2,37	26	12,5	1,5	11	72
I	1	0,175	9,38	2,37	16,5	5,5	1	42	79
I	2	0,175	9,38	2,37	16,5	5,5	1,5	42	119
I	3	0,175	9,38	2,37	16,5	12,5	1	42	180
I	4	0,175	9,38	2,37	16,5	12,5	1,5	42	270
I	5	0,325	9,38	2,37	16,5	12,5	1	11	48
I	6	0,325	9,38	2,37	16,5	12,5	1,5	11	72
V	1	0,175	Variable	1,68	26	5,5	1	42	79
V	2	0,175	Variable	1,68	26	5,5	1,5	42	119
V	3	0,175	Variable	1,68	26	12,5	1	42	180
V	4	0,175	Variable	1,68	26	12,5	1,5	42	270
V	5	0,325	Variable	1,68	26	12,5	1	11	48
V	6	0,325	Variable	1,68	26	12,5	1,5	11	72

Annexe I : Les codes de Matlab adoptés pour le traitement d'images

```

% Script permettant d'obtenir une image moyenne à partir de plusieurs images

function image_moyenne(path,path_result)

path = '\\recherche.ad.inp-toulouse.fr\usersA7-R\bkawas\Bureau\OBR\Résultat-
Caméra\19-03-2021\QL_1_0.5_QG_286_H_Essai51_début';
path_result = '\\recherche.ad.inp-toulouse.fr\usersA7-R\bkawas\Bureau\Matlab
code\Results';

list_dir=dir([path,'*.tif']);
if size(list_dir,1)<1
    return
end

for i=1:size(list_dir,1)

a=imread([path,'',list_dir(i).name]);
image_a=zeros(size(a,1),size(a,2),'double');
nb_image=size(list_dir(i),1);
    for ii = 1:nb_image
        image_a = imadd(image_a,double(imread([path,'',list_dir(ii).name])));
%remplir l'image
    end

    image_m = image_a/nb_image;

    noir=double(imread('\\recherche.ad.inp-toulouse.fr\usersA7-
R\bkawas\Bureau\Matlab code\Image initiale\H_Essai51_début_initial.tif'));

    image_m1=noir-image_m; %soustraction du noir

    image_m2 = imcrop (image_m1,[50 160 630 110]);
        for j=1:size(image_m2,1)
            for k=1:size(image_m2,2)
                pixel = image_m2(j,k);
if pixel <0
                pixel = - pixel;
            end
if ((pixel > 35) && (pixel < 65))
                new_pixel = 170; %gris = bien mélangé
elseif pixel < 35
                new_pixel = 255; %blanc = non mélangé
else new_pixel = 0; %noir = sur-concentré
            end

                image_moyenne_tresholded(j,k)=new_pixel;

            end
        end
    end
end

```

Figure I.1 : Le code utilisé pour les opérations arithmétiques et le seuillage d'images

Annexes

```
% Script permettant de compter et trier les pixels dans une image binaire

imagename=double(imread('\\recherche.ad.inp-toulouse.fr\usersA7-
R\bkawas\Bureau\Matlab code\Results\Réacteur B - Final\Image Moyenne -
Final\B_Essai119_début.tif'));

numTotalPixel = size(imagename,1) * size(imagename, 2);
numBlackPixel = sum(imagename(:)==0);
numGrayPixel = sum(imagename(:)==170);
numWhitePixel = sum(imagename(:)==255);

percentBlackPixel = (numBlackPixel / numTotalPixel) * 100;
percentGrayPixel = (numGrayPixel / numTotalPixel) * 100;
percentWhitePixel = (numWhitePixel / numTotalPixel) * 100;

if numBlackPixel+ numGrayPixel + numWhitePixel ~= numTotalPixel
    disp 'Error\n'
else
    sprintf('Black pixel: %.2f%%, Gray pixel: %.2f%%, White pixel: %.2f%%\n',
percentBlackPixel, percentGrayPixel, percentWhitePixel)
end
```

Figure I.2 : Le code utilisé pour le comptage des pixels

```
%NIVEAU DE GRIS POUR 5 PARTIES HORIZONTALES SEULEMENT

I = imread ('\\recherche.ad.inp-toulouse.fr\usersA7-R\bkawas\Bureau\Matlab
code\Results\Réacteur B - Image Moyenne\m_B.tif');

I_2 = imcrop (I,[75 175 640 85]);

%load image: rows and columns
[R C] = size (I_2);

%divide image into five equal parts (horizontally)

P11 = I_2(1:(R/5),:);
P12 = I_2((R/5)+1:2*(R/5),:);
P13 = I_2((2*(R/5))+1:3*(R/5),:);
P14 = I_2((3*(R/5))+1:4*(R/5),:);
P15 = I_2((4*(R/5))+1:R,:);

NG1 = mean2(P11);
NG2 = mean2(P12);
NG3 = mean2(P13);
NG4 = mean2(P14);
NG5 = mean2(P15);

sprintf('Niveau de Gris 1: %.2f, Niveau de Gris 2: %.2f, Niveau de Gris 3:
%.2f, Niveau de Gris 4: %.2f, Niveau de Gris 5: %.2f', NG1, NG2, NG3, NG4,
NG5)
```

Figure I.3 : Le code utilisé pour la détermination du niveau de gris

Annexe J : La méthodologie appliquée pour établir les courbes d'étalonnages des niveaux de gris

Afin d'établir les différentes courbes d'étalonnage utilisée pour la partie 2.4.3.2.1 (chapitre IV), la méthode suivante est adoptée :

1. Avec la même caméra utilisée dans nos travaux (*EoSens CL Super Sensitive*), des nouvelles images en niveau de gris sont prises pour le réacteur (sans ruban hélicoïdal) avec 11 solutions différentes d'eau/glycérol et bleu de méthylène pour une gamme de concentrations allant de 0 à une concentration parfaitement mélangée ($C\phi$ en g/mL, Figure J.1).
2. Chaque image obtenue (11 en total) est divisée en 5 tranches horizontales (selon le diamètre, Figure J.1) pour observer la variation de la concentration selon la profondeur. Les niveaux de gris de chaque tranche sont ensuite obtenus en utilisant un code rédigé sur Matlab (Figure I.3, Annexe I).
3. Ces niveaux de gris sont ensuite reliés aux diverses concentrations à travers 5 courbes d'étalonnage ; chaque courbe représente une tranche horizontale du réacteur. Ils sont illustrés en Figure J.2.

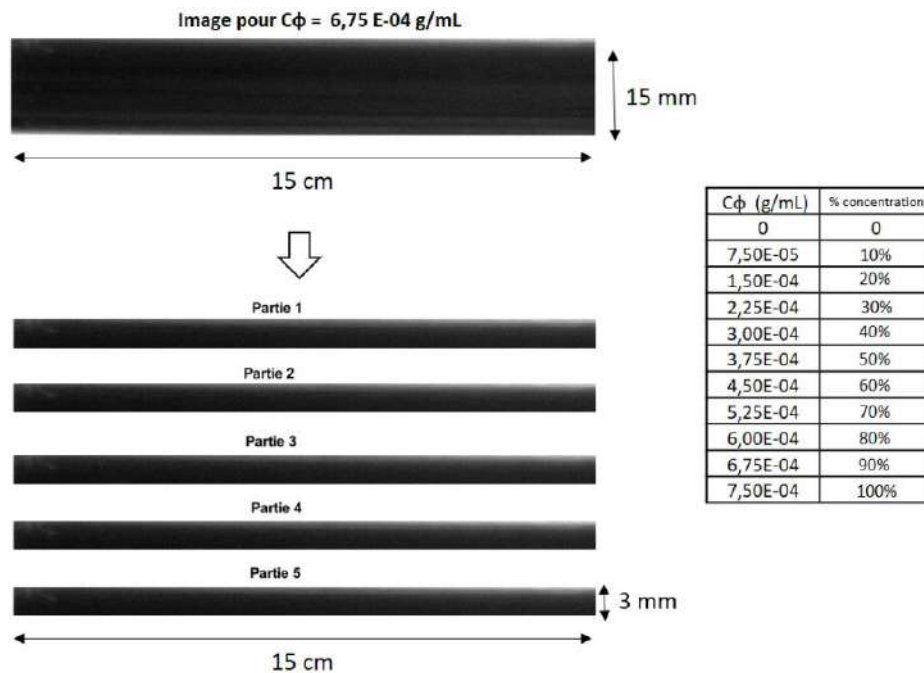


Figure J.1 : L'image de le COBR avec une solution d'eau/glycérol et bleu de méthylène de concentration $6,75E^{-04}$ g/mL

Annexes

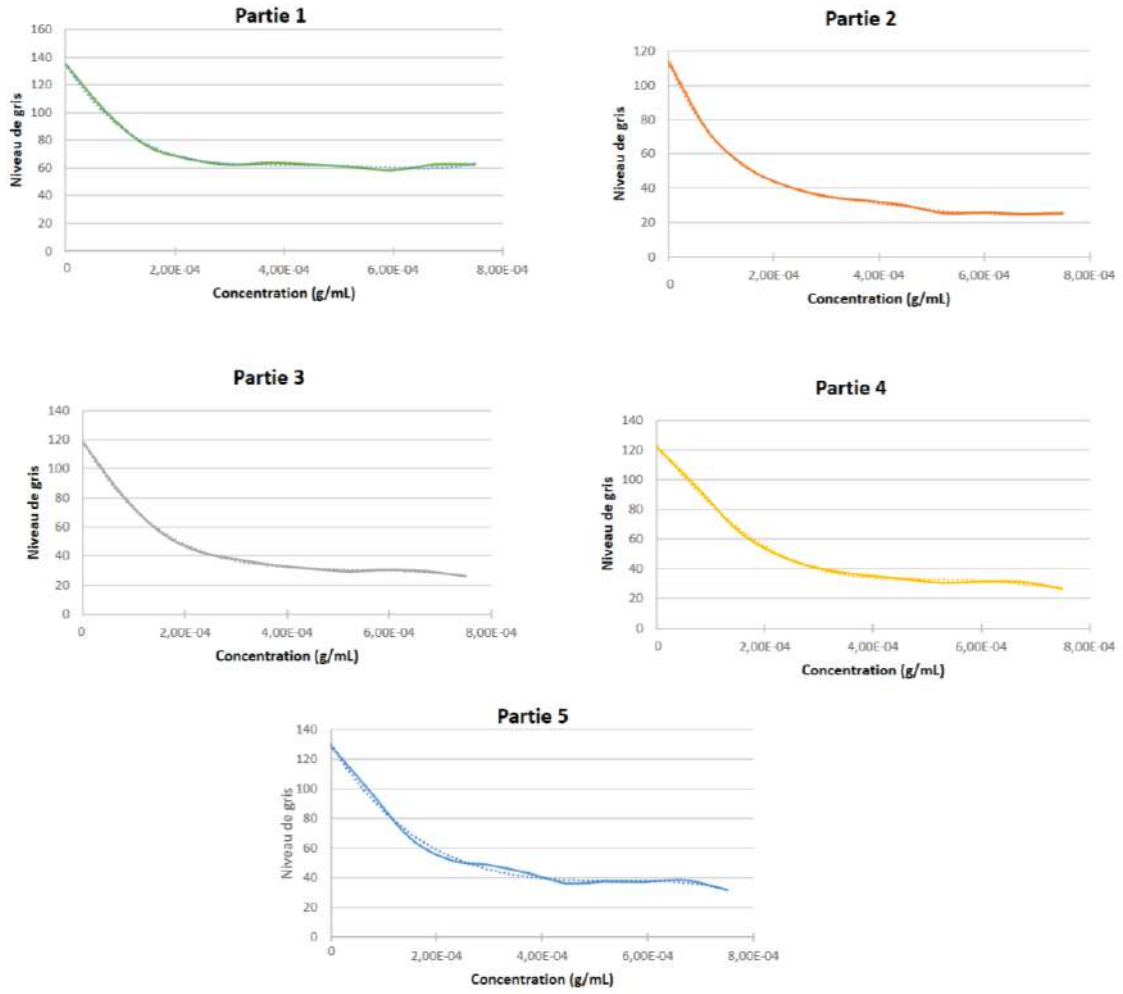


Figure J.2 : Les courbes d'étalonnage qui relient les niveaux de gris aux concentrations

Références Bibliographiques

Abdul Rahim, M. A., Phan, A. N., & Harvey, A. P. (2020). Intensification of epoxidation of vegetable oils using a continuous mesoscale oscillatory baffled reactor. *Journal of Advanced Manufacturing and Processing*, 2(3), e10041.

Ahmed, S. M., Law, R., Phan, A. N., & Harvey, A. P. (2018b). Thermal performance of meso-scale oscillatory baffled reactors. *Chemical Engineering and Processing-Process Intensification*, 132, 25-33.

Ahmed, S. M., Phan, A. N., & Harvey, A. P. (2017). Scale-Up of Oscillatory Helical Baffled Reactors Based on Residence Time Distribution. *Chemical Engineering & Technology*, 40(5), 907-914.

Ahmed, S. M., Phan, A. N., & Harvey, A. P. (2018a). Mass transfer enhancement as a function of oscillatory baffled reactor design. *Chemical Engineering and Processing-Process Intensification*, 130, 229-239.

Alix, P., Raynal, L., Abbe, F., Meyer, M., Prevost, M., & Rouzineau, D. (2011). Mass transfer and hydrodynamic characteristics of new carbon carbon packing: Application to CO₂ post-combustion capture. *Chemical Engineering Research and Design*, 89(9), 1658-1668.

Al-Ketan, O., Assad, M. A., & Al-Rub, R. K. A. (2017). Mechanical properties of periodic interpenetrating phase composites with novel architected microstructures. *Composite Structures*, 176, 9-19.

Ambrosetti, M., Groppi, G., Schwieger, W., Tronconi, E., & Freund, H. (2020). Packed Periodic Open Cellular Structures—an Option for the Intensification of Non-Adiabatic Catalytic Processes. *Chemical Engineering and Processing-Process Intensification*, 155, 108057.

Avila, M., Kawas, B., Fletcher, D. F., Poux, M., Xuereb, C., & Aubin, J. (2021). Design, performance characterization and applications of continuous oscillatory baffled reactors. Manuscript submitted for publication.

Azuaje, J., Tubío, C. R., Escalante, L., Gómez, M., Guitián, F., Coelho, A., ... & Sotelo, E. (2017). An efficient and recyclable 3D printed α -Al₂O₃ catalyst for the multicomponent assembly of bioactive heterocycles. *Applied Catalysis A: General*, 530, 203-210.

Bennet, D.L. (2000). Optimize distillation columns Part II: Packed column. *Chemical Engineering Progress*, 96 (5), 27-34.

Bessou, V., Rouzineau, D., Prevost, M., Abbé, F., Dumont, C., Maumus, J. P., & Meyer, M. (2010). Performance characteristics of a new structured packing. *Chemical engineering science*, 65(16), 4855-4865.

Bolton, S., Kasturi, A., Palko, S., Lai, C., Love, L., Parks, J., ... & Tsouris, C. (2019). 3D printed structures for optimized carbon capture technology in packed bed columns. *Separation Science and Technology*, 54(13), 2047-2058.

Brunazzin, E., & Paglianti, A. (1997). Mechanistic pressure drop model for columns containing structured packings. *AIChE journal*, 43(2), 317-327.

- Brunold, C. R., Hunns, J. C. B., Mackley, M. R., & Thompson, J. W.** (1989). Experimental observations on flow patterns and energy losses for oscillatory flow in ducts containing sharp edges. *Chemical Engineering Science*, 44(5), 1227-1244.
- Carillo, F., Martín, A., & Roselló, A.** (2000). A shortcut method for the estimation of structured packings HEPT in distillation. *Chemical Engineering & Technology: Industrial Chemistry-Plant Equipment-Process Engineering-Biotechnology*, 23(5), 425-428.
- Chemtech, S.** (2010). Structured packings for distillation, absorption and reactive distillation. *Sulzer Chemtech Ltd, Winterthur*.
- Chen, J., Liu, C., Yuan, X., & Yu, G.** (2009). CFD simulation of flow and mass transfer in structured packing distillation columns. *Chinese Journal of Chemical Engineering*, 17(3), 381-388.
- Chen, Y., & Cheng, P.** (2002). Heat transfer and pressure drop in fractal tree-like microchannel nets. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 45(13), 2643-2648.
- Chen, Z., Xie, Y. M., Wu, X., Wang, Z., Li, Q., & Zhou, S.** (2019). On hybrid cellular materials based on triply periodic minimal surfaces with extreme mechanical properties. *Materials & Design*, 183, 108109.
- Chin, P., Sun, X., Roberts, G. W., & Spivey, J. J.** (2006). Preferential oxidation of carbon monoxide with iron-promoted platinum catalysts supported on metal foams. *Applied Catalysis A: General*, 302(1), 22-31.
- Chircop, K., & Zammit-Mangion, D.** (2013). On ϵ -constraint based methods for the generation of Pareto frontiers. *Journal of Mechanics Engineering and Automation*, 3(5), 279-289.
- Dejean, B., Meyer, M., & Rouzineau, D.** (2020). Design and conception of an innovative packing for separation column—Part I: Hydrodynamic study on wire intersections. *Chemical Engineering Research and Design*, 160, 11-19.
- Dietrich, B., Schabel, W., Kind, M., & Martin, H.** (2009). Pressure drop measurements of ceramic sponges—Determining the hydraulic diameter. *Chemical Engineering Science*, 64(16), 3633-3640.
- Do, G., Geißelbrecht, M., Schwieger, W., & Freund, H.** (2020). Additive manufacturing of interpenetrating periodic open cellular structures (interPOCS) with in operando adjustable flow characteristics. *Chemical Engineering and Processing-Process Intensification*, 148, 107786.
- Dolamore, F., Fee, C., & Dimartino, S.** (2018). Modelling ordered packed beds of spheres: The importance of bed orientation and the influence of tortuosity on dispersion. *Journal of Chromatography A*, 1532, 150-160.
- Erasmus, A. B.** (2004). *Mass transfer in structured packing* (Doctoral dissertation, Stellenbosch: University of Stellenbosch).
- Ergun, S.** (1952). Fluid flow through packed columns. *Chem. Eng. Prog.*, 48, 89-94.

- Fair, J. R., Seibert, A. F., Behrens, M., Saraber, P. P., & Olujic, Z.** (2000). Structured packing performance experimental evaluation of two predictive models. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 39(6), 1788-1796.
- Fitch, A. W., Jian, H., & Ni, X.** (2005). An investigation of the effect of viscosity on mixing in an oscillatory baffled column using digital particle image velocimetry and computational fluid dynamics simulation. *Chemical Engineering Journal*, 112(1-3), 197-210.
- González-Juárez, D., Solano, J. P., Herrero-Martín, R., & Harvey, A. P.** (2017). Residence time distribution in multiorifice baffled tubes: A numerical study. *Chemical Engineering Research and Design*, 118, 259-269.
- Gornet, L.** (2008). Généralités sur les matériaux composites.
- Goupy, J.** (2006). *Plans d'expériences*. Ed. Techniques Ingénieur.
- Gregory, S. R.** (1991). Physical properties of glycerine (pp. 113-156). Marcel Dekker: New York.
- Haroun, Y., Raynal, L., & Legendre, D.** (2012). Mass transfer and liquid hold-up determination in structured packing by CFD. *Chemical engineering science*, 75, 342-348.
- He, G., Kochergin, V., Li, Y., & Nandakumar, K.** (2018). Investigations about the effect of fractal distributors on the hydrodynamics of fractal packs of novel plate and frame designs. *Chemical Engineering Science*, 177, 195-209.
- Hegely, L., Roesler, J., Alix, P., Rouzineau, D., & Meyer, M.** (2017). Absorption methods for the determination of mass transfer parameters of packing internals: A literature review. *AIChE Journal*, 63(8), 3246-3275.
- Helou, M., & Kara, S.** (2018). Design, analysis and manufacturing of lattice structures: an overview. *International Journal of Computer Integrated Manufacturing*, 31(3), 243-261.
- Horie, T., Shiota, S., Akagi, T., Ohmura, N., Wang, S., Eze, V., ... & Hirata, Y.** (2018). Intensification of hollow fiber membrane cross-flow filtration by the combination of helical baffle and oscillatory flow. *Journal of Membrane Science*, 554, 134-139.
- Hosseini, S. H., Shojaee, S., Ahmadi, G., & Zivdar, M.** (2012). Computational fluid dynamics studies of dry and wet pressure drops in structured packings. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 18(4), 1465-1473.
- Houam, Y.** (2013). *Commande multi-objectifs en utilisant les inégalités matricielles linéaires (LMIs) et les algorithmes génétiques* (Doctoral dissertation, Université Mohamed Khider-Biskra).
- Inayat, A., Klumpp, M., Lämmermann, M., Freund, H., & Schwieger, W.** (2016). Development of a new pressure drop correlation for open-cell foams based completely on theoretical grounds: Taking into account strut shape and geometric tortuosity. *Chemical Engineering Journal*, 287, 704-719.
- Inayat, A., Schwerdtfeger, J., Freund, H., Körner, C., Singer, R. F., & Schwieger, W.** (2011). Periodic open-cell foams: pressure drop measurements and modeling of an ideal tetrakaidecahedra packing. *Chemical engineering science*, 66(12), 2758-2763.

- Jin, N., Wang, F., Wang, Y., Zhang, B., Cheng, H., & Zhang, H.** (2019). Failure and energy absorption characteristics of four lattice structures under dynamic loading. *Materials & Design*, 169, 107655.
- Kalsoom, U., Nesterenko, P. N., & Paull, B.** (2018). Current and future impact of 3D printing on the separation sciences. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*.
- Kawas, B., Mizzi, B., Dejean, B., Rouzineau, D., & Meyer, M.** (2021a). Design and conception of an innovative packing for separation column—Part II: Design and characterization of a wire based packing. *Chemical Engineering Research and Design*, 169, 189-203.
- Kawas, B., Mizzi, B., Rouzineau, D., & Meyer, M.** (2021b). Design and conception of an innovative packing for separation column—Part III: Development of new hydrodynamic and mass transfer correlations for a wire-based lattice packing. *Chemical Engineering Research and Design*, 172, 21-33.
- Kister, H.** (1992). *Distillation Design*, McGraw-Hill, New York.
- Klumpp, M., Inayat, A., Schwerdtfeger, J., Körner, C., Singer, R. F., Freund, H., & Schwieger, W.** (2014). Periodic open cellular structures with ideal cubic cell geometry: effect of porosity and cell orientation on pressure drop behavior. *Chemical Engineering Journal*, 242, 364-378.
- Koch-Glitsch**, (2015). *Structured packing*. Koch-Glitsch LP.
- Kolodziej, A., Jaroszyński, M., & Bylica, I.** (2004). Mass transfer and hydraulics for KATAPAK-S. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 43(3), 457-464.
- Komori, T., & Ohe, S.** (1990). Vapor-liquid-equilibrium data for the system-cyclohexane-n-heptane at atmospheric-pressure. *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, 16(2), 384-387.
- Lacroix, M., Nguyen, P., Schweich, D., Huu, C. P., Savin-Poncet, S., & Edouard, D.** (2007). Pressure drop measurements and modeling on SiC foams. *Chemical engineering science*, 62(12), 3259-3267.
- Lämmermann, M., Horak, G., Schwieger, W., & Freund, H.** (2018). Periodic open cellular structures (POCS) for intensification of multiphase reactors: Liquid holdup and two-phase pressure drop. *Chemical Engineering and Processing-Process Intensification*, 126, 178-189.
- Lévêque, J.** (2010). *Etude du comportement de mousse céramique comme contacteur Gaz/Liquide à contre courant: application à la distillation et à la distillation réactive* (Doctoral dissertation).
- Lévêque, J., Rouzineau, D., Prévost, M., & Meyer, M.** (2009). Hydrodynamic and mass transfer efficiency of ceramic foam packing applied to distillation. *Chemical Engineering Science*, 64(11), 2607-2616.
- Li, X., Liu, C. J., & Yuan, X. G.** (2012). Hydrodynamics and mass transfer behavior of a novel structured packing with diversion windows. In *Advanced Materials Research* (Vol. 391, pp. 1459-1463). Trans Tech Publications Ltd.
- Lobo, W. E., Friend, L., Hashmall, F., & Zenz, F.** (1945). Limiting capacity of dumped tower packings. *Transactions of the American Institute of Chemical Engineers*, 41(6), 693-710.

- Lockett, M. J.** (1998). Easily predict structured-packing HETP. *Chemical engineering progress*, 94(1), 60-66.
- Mackowiak, J.** (1990). Determination of flooding gas velocity and liquid hold-up at flooding in packed columns for gas/liquid systems. *Chemical engineering & technology*, 13(1), 184-196.
- Mackowiak, J.** (2010). Fluid dynamics of packed columns. *Principles of the Fluid Dynamic Design of Columns for Gas/Liquid and Liquid/Liquid Systems*, London, New York.
- Mardani, S., Ojala, L. S., Uusi-Kyyny, P., & Alopaeus, V.** (2016). Development of a unique modular distillation column using 3D printing. *Chemical Engineering and Processing-Process Intensification*, 109, 136-148.
- Mazubert, A.** (2014). *Selection, development and design of a continuous and intensified reactor technology to transform waste cooking oil in biodiesel and biosourced formulations* (Doctoral dissertation).
- Mazubert, A., Crockatt, M., Poux, M., Aubin, J., & Roelands, M.** (2015). Reactor comparison for the esterification of fatty acids from waste cooking oil. *Chemical Engineering & Technology*, 38(12), 2161-2169.
- Mazubert, A., Fletcher, D. F., Poux, M., & Aubin, J.** (2016). Hydrodynamics and mixing in continuous oscillatory flow reactors—Part I: Effect of baffle geometry. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 108, 78-92.
- McDonough, J. R., Ahmed, S. M. R., Phan, A. N., & Harvey, A. P.** (2017). A study of the flow structures generated by oscillating flows in a helical baffled tube. *Chemical Engineering Science*, 171, 160-178.
- McDonough, J. R., Ahmed, S. M. R., Phan, A. N., & Harvey, A. P.** (2019a). The development of helical vortex pairs in oscillatory flows—A numerical and experimental study. *Chemical Engineering and Processing-Process Intensification*, 143, 107588.
- McDonough, J. R., Oates, M. F., Law, R., & Harvey, A. P.** (2019b). Micromixing in oscillatory baffled flows. *Chemical Engineering Journal*, 361, 508-518.
- McDonough, J. R., Phan, A. N., & Harvey, A. P.** (2015). Rapid process development using oscillatory baffled mesoreactors – a state-of-the-art review. *Chemical Engineering Journal*, 265, 110-121.
- Meier, W.** (1981). *U.S. Patent No. 4,296,050*. Washington, DC: U.S. Patent and Trademark Office.
- Meier, W., Hunkeler, R., & Stöcker, W. D.** (1979). Sulzer Mellapak—Eine neue, geordnete Packung für Stoffaustausch-Apparate. *Chemie Ingenieur Technik*, 51(2), 119-122.
- Meng, H. B., Song, M. Y., Yu, Y. F., Jiang, X. H., Wang, Z. Y., & Wu, J. H.** (2017). Enhancement of laminar flow and mixing performance in a Lightning static mixer. *International Journal of Chemical Reactor Engineering*, 15(3).
- Mikolajewska, E., Macko, M., Ziarnicki, Ł., Stańczak, S., Kawalec, P., & Mikolajewski, D.** (2014). 3D printing technologies in rehabilitation engineering. *Journal of Health Sciences*, 4(12), 78-83.

- Miramontes, E., Love, L. J., Lai, C., Sun, X., & Tsouris, C.** (2020). Additively manufactured packed bed device for process intensification of CO₂ absorption and other chemical processes. *Chemical Engineering Journal*, 388, 124092.
- Miyahara, T., Ogawa, K., Nagano, Y., Hirade, A., & Takahashi, T.** (1992). Flow dynamics in low height packed column having large fractional void space. *Chemical engineering science*, 47(13-14), 3323-3330.
- Montz**, (2010). Montz Your Partner in Chemical Engineering. *Julius Montz GmbH*.
- Moritz, P., & Hasse, H.** (1999). Fluid dynamics in reactive distillation packing Katapak®-S. *Chemical Engineering Science*, 54(10), 1367-1374.
- Mortazavi, H., & Pakzad, L.** (2020). The Hydrodynamics and Mixing Performance in a Moving Baffle Oscillatory Baffled Reactor through Computational Fluid Dynamics (CFD). *Processes*, 8(10), 1236.
- Nawada, S., Dimartino, S., & Fee, C.** (2017). Dispersion behavior of 3D-printed columns with homogeneous microstructures comprising differing element shapes. *Chemical Engineering Science*, 164, 90-98.
- Nazir, A., Abate, K. M., Kumar, A., & Jeng, J. Y.** (2019). A state-of-the-art review on types, design, optimization, and additive manufacturing of cellular structures. *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, 104(9), 3489-3510.
- Neukaeufer, J., Hanusch, F., Kutscherauer, M., Rehfeldt, S., Klein, H., & Grützner, T.** (2019). Methodology for the development of additively manufactured packings in thermal separation technology. *Chemical Engineering & Technology*, 42(9), 1970-1977.
- Ni, X., & Gao, S.** (1996). Mass transfer characteristics of a pilot pulsed baffled reactor. *Journal of Chemical Technology & Biotechnology: International Research in Process, Environmental And Clean Technology*, 65(1), 65-71.
- Ni, X., Brogan, G., Struthers, A., Bennett, D. C., & Wilson, S. F.** (1998). A systematic study of the effect of geometrical parameters on mixing time in oscillatory baffled columns. *Chemical Engineering Research and Design*, 76(5), 635-642.
- Nitech Solutions** (2019). *DN15 Key Features – continuous manufacturing* [Video]. YouTube. https://www.youtube.com/watch?v=p03LZtwd0Sc&ab_channel=NitechSolutions
- Nogueira, X., Taylor, B. J., Gomez, H., Colominas, I., & Mackley, M. R.** (2013). Experimental and computational modeling of oscillatory flow within a baffled tube containing periodic-tri-orifice baffle geometries. *Computers & Chemical Engineering*, 49, 1-17.
- Nusselt, W.** (1916). Die oberflächenkondensation des wasserdampfes. *VDI-Zs*, 60, 541.
- Olenberg, A., Reschetnik, W., Kullmer, G., & Kenig, E. Y.** (2018). Optimization of structured packings using twisted tape inserts. *Chemical Engineering Research and Design*, 132, 1-8.
- Olujic Z., Seibert A.F., Fair J.R.,** (2000). Influence of corrugation geometry on the performance of structured packings: an experimental study. *Chemical Engineering and Processing*, 39, 335-342.

- Olujic, Z.** (2008). Standardization of structured packing efficiency measurements. *Delft University of Technology Process & Energy Department NL-2628 CA Delft*.
- Olujic, Z.** (2019). Predicting the Pressure Drop of Corrugated Sheet Structured Packings in Deep Vacuum Applications. *Chemical and Biochemical Engineering Quarterly*, 33(3), 303-324.
- Ottenbacher, M., Olujić, Ž., Adrian, T., Jödecke, M., & Großmann, C.** (2011). Structured packing efficiency—Vital information for the chemical industry. *Chemical Engineering Research and Design*, 89(8), 1427-1433.
- Parkinson G.** (2000). Drip drop in column internals. *Chemical Engineering* 107: 27-31.
- Parra-Cabrera, C., Achille, C., Kuhn, S., & Ameloot, R.** (2018). 3D printing in chemical engineering and catalytic technology: structured catalysts, mixers and reactors. *Chemical Society Reviews*, 47(1), 209-230.
- Pavlenko, A. N., Zeng, J., Pecherkin, N. I., Zhukov, V. E., & Volodin, O. A.** (2016). Separation efficiency and pressure drop of SiC ceramic and Mellapak structured packings. *Journal of Engineering Thermophysics*, 25(1), 1-14.
- Pence, D.** (2010). The simplicity of fractal-like flow networks for effective heat and mass transport. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 34(4), 474-486.
- Phan, A. N., & Harvey, A.** (2010). Development and evaluation of novel designs of continuous mesoscale oscillatory baffled reactors. *Chemical Engineering Journal*, 159(1-3), 212-219.
- Phan, A. N., & Harvey, A. P.** (2011). Effect of geometrical parameters on fluid mixing in novel mesoscale oscillatory helical baffled designs. *Chemical Engineering Journal*, 169(1-3), 339-347.
- Phan, A. N., Harvey, A. P., & Rawcliffe, M.** (2011). Continuous screening of base-catalysed biodiesel production using New designs of mesoscale oscillatory baffled reactors. *Fuel Processing Technology*, 92(8), 1560-1567.
- Roizard, C., Wild, G., & Charpentier, J. C.** (1997). Absorption avec réaction chimique. *Techniques de l'ingénieur. Génie des procédés*, 1(J1079), J1079-1.
- Romain, J., Guillaume, D., Karine, L., & Fabrice, D.** (2014). Modélisation en génie des procédés par analyse dimensionnelle. *Lavoisier*.
- Rouzineau, D., Meyer, M., & Dejean, B.** (2020). Patent FR 2008668.
- Sadi, F., Soukhal, A., & Mille, B.** (2014). Méthodes approchées pour la résolution d'un problème d'ordonnancement avec travaux interférants. (*Rapport Final de PFE, École Polytechnique de l'Université de Tours*).
- Said, W., Nemer, M., & Clodic, D.** (2011). Modeling of dry pressure drop for fully developed gas flow in structured packing using CFD simulations. *Chemical Engineering Science*, 66(10), 2107-2117.

- Sharma, S., Rangaiah, G. P., & Maréchal, F.** (2017). Integrated multi-objective differential evolution and its application to amine absorption process for natural gas sweetening. *Differential Evolution in Chemical Engineering*.
- Sheely, M. L.** (1932). Glycerol viscosity tables. *Industrial & Engineering Chemistry*, 24(9), 1060-1064.
- Sherwood, T. K., Shipley, G. H., & Holloway, F. A. L.** (1938). Flooding velocities in packed columns. *Industrial & Engineering Chemistry*, 30(7), 765-769.
- Singh, M. K., Anderson, P. D., & Meijer, H. E.** (2009a). Understanding and optimizing the SMX static mixer. *Macromolecular rapid communications*, 30(4-5), 362-376.
- Singh, M. K., Kang, T. G., Anderson, P. D., Meijer, H. E., & Hrymak, A. N.** (2009b). Analysis and optimization of low-pressure drop static mixers. *AIChE journal*, 55(9), 2208-2216.
- Soufi, M. D., Ghobadian, B., Najafi, G., Mousavi, S. M., & Aubin, J.** (2017). Optimization of methyl ester production from waste cooking oil in a batch tri-orifice oscillatory baffled reactor. *Fuel Processing Technology*, 167, 641-647.
- Soulaine, C.** (2012). *Modélisation des écoulements dans les garnissages structurés: de l'échelle du pore à l'échelle de la colonne* (Doctoral dissertation).
- Spiegel, L., & Meier, W.** (1992). A generalized pressure drop model for structured packings. *Institution Of Chemical Engineers Symposium Series* (Vol. 128, pp. B85-B85). Hemisphere Publishing Corporation.
- Stankiewicz, A. I., & Moulijn, J. A.** (2000). Process intensification: transforming chemical engineering. *Chemical engineering progress*, 96(1), 22-34.
- Stankiewicz, A., Van Gerven, T., & Stefanidis, G.** (2019). *The fundamentals of process intensification*. John Wiley & Sons.
- Stichlmair, J., Bravo, J. L., & Fair, J. R.** (1989). General model for prediction of pressure drop and capacity of countercurrent gas/liquid packed columns. *Gas Separation & Purification*, 3(1), 19-28.
- Stonestreet, P., & Van Der Veeken, P. M. J.** (1999). The effects of oscillatory flow and bulk flow components on residence time distribution in baffled tube reactors. *Chemical Engineering Research and Design*, 77(8), 671-684.
- Stuecker, J. N., Miller, J. E., Ferrizz, R. E., Mudd, J. E., & Cesarano, J.** (2004). Advanced support structures for enhanced catalytic activity. *Industrial & engineering chemistry research*, 43(1), 51-55.
- Subawalla H., Castor Gonzalez J., Seibert A. F., Fair J. R.,** (1997). Capacity and efficiency of reactive distillation bale packing: Modeling and Experimental Validation. *Industrial Engineering Chemical Research*, 36, 3821-3832.
- Suess, P., & Spiegel, L.** (1992). Hold-up of Mellapak structured packings. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 31(2), 119-124.
- Sulzer.** (2015). *Sulcol* (Version 3.2.20) [Computer software].
<https://www.sulzer.com/en/shared/products/sulcol-for-windows>

- Sun, B., Bhatelia, T., Utikar, R. P., Evans, G. M., & Pareek, V. K.** (2021). Study on hydrodynamic performance of structured packings for gas-liquid flow: Effects of geometry parameters. *Chemical Engineering Research and Design*, 167, 6-9.
- Tadrist, L., Miscevic, M., Rahli, O., & Topin, F.** (2004). About the use of fibrous materials in compact heat exchangers. *Experimental thermal and fluid science*, 28(2-3), 193-199.
- Takahashi, T., & Fujita, K.** (1967). A Correlation of Flooding Velocities in Countercurrent Gas-Liquid Contactor of Column Type. *Memoirs of the School of Engineering, Okayama University*, 2(1), 43-49.
- Tubío, C. R., Azuaje, J., Escalante, L., Coelho, A., Guitián, F., Sotelo, E., & Gil, A.** (2016). 3D printing of a heterogeneous copper-based catalyst. *Journal of Catalysis*, 334, 110-115.
- Ullah, A. M. M., D'Addona, D. M., Seto, Y., Yonehara, S., & Kubo, A.** (2021). Utilizing Fractals for Modeling and 3D Printing of Porous Structures. *Fractal and Fractional*, 5(2), 40.
- Valenz, L., Haidl, J., & Linek, V.** (2013). The effect of column diameter and packing height on the pressure drop and on the HETP of structured packings. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 52(17), 5967-5974.
- Vivian, J. E., Brian, P. L. T., & Krukoniš, V. J.** (1967). Gas absorption in packed columns: Liquid phase resistance in the loading region. *AIChE Journal*, 13(1), 174-175.
- Wang, C., Perry, M., Seibert, F., & Rochelle, G.** (2014). Packing characterization for post combustion CO₂ capture: mass transfer model development. *Energy Procedia*, 63, 1727-1744.
- Wang, G. Q., Yuan, X. G., & Yu, K. T.** (2005). Review of mass-transfer correlations for packed columns. *Industrial & engineering chemistry research*, 44(23), 8715-8729.
- Wang, G., Gu, Y., Zhao, L., Xuan, J., Zeng, G., Tang, Z., & Sun, Y.** (2019). Experimental and numerical investigation of fractal-tree-like heat exchanger manufactured by 3D printing. *Chemical Engineering Science*, 195, 250-261.
- Yala, O.** (2017). *Optimisation des colonnes HIDIc, intégrant une mousse métallique, basée sur une étude théorique et expérimentale des transferts thermiques* (Doctoral dissertation).
- Zhao, Y., Zhou, J., Zhang, J., & Wang, S.** (2008). Monolithic Ru-based catalyst for selective hydrogenation of benzene to cyclohexene. *Catalysis Communications*, 9(3), 459-464.
- Zheng, M., Li, J., Mackley, M. R., & Tao, J.** (2007). The development of asymmetry for oscillatory flow within a tube containing sharp edge periodic baffles. *Physics of Fluids*, 19(11), 114101.
- Zhou, J.** (2006). *Advanced structural materials*. Porous Metallic Materials, ed. e. Winston O. Soboyejo., CRC Press, Taylor & Francis Group. USA, 22.