



THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par *l'Institut National polytechnique de Toulouse*
Discipline ou spécialité : *Génie des Procédés et de l'Environnement*

Présentée et soutenue par *Zoé ANXIONNAZ*
Le 28 Octobre 2009

Titre :
Etude de l'influence de la géométrie des canaux sur les performances d'un réacteur/échangeur.

JURY

Mme Marie-Elisabeth BORREDON (Présidente du jury)
M. Laurent FALK (Rapporteur)
M. Hassan PEERHOSSAINI (Rapporteur)
M. Michel CABASSUD (Directeur de thèse)
M. Christophe GOURDON (co-encadrant)
M. Hocine KABIR (Examineur)
M. Patrice TOCHON (Examineur)

Ecole doctorale : *Mécanique, Energétique, Génie civil, Procédés (MEGeP)*
Unité de recherche : *Laboratoire de Génie Chimique (LGC), Toulouse*
Directeur(s) de Thèse : *M. Michel CABASSUD*
Rapporteurs : *M. Laurent FALK et M. Hassan PEERHOSSAINI*

Remerciements

Ces trois années de thèse sont passées à une allure folle mais resteront inoubliables grâce aux belles rencontres que j'ai eu la chance de faire et à l'expérience formidablement enrichissante qu'elles m'ont apportées. Je me suis levée tous les matins (sauf les weekends !) pendant trois ans avec le plaisir d'aller travailler, sincèrement ; avec l'envie d'avancer, de ne pas décevoir ceux qui m'ont fait confiance et de présenter ces travaux de thèse avec fierté.

Je souhaite pour cela remercier du fond du cœur mes deux encadrants de tous les jours, Michel Cabassud et Christophe Gourdon, dont la complémentarité est indiscutable et tellement efficace. Michel, merci pour tes encouragements, tes remarques toujours si avisées arrivant à point nommé et ton soutien sans relâche. Christophe, merci pour ton enthousiasme débordant si communicatif, la confiance que tu m'as accordée depuis la relecture des « phénomènes de transfert en génie des procédés » et ta faculté étonnante de pouvoir remonter le moral en quelques mots. Je vous suis sincèrement reconnaissante pour tout ce que vous m'avez apporté, votre expérience inestimable, votre savoir partagé et espère pouvoir un jour vous rendre la pareille. Merci pour l'implication que vous m'avez donnée dans des projets passionnants, et pour les très bons moments passés en votre compagnie.

Je tiens également à remercier chaleureusement Patrice Tochon, pour les nombreuses « casquettes » que tu as su endosser au cours de ces trois années, pour m'avoir toujours accordé du temps quand j'en avais besoin, donné des conseils précieux (si l'on excepte Wilson !), et m'avoir fait profiter de ton expérience si riche. Bien sûr je te suis profondément reconnaissante pour la confiance que tu m'accordes en tant que chef du LETh, pour m'avoir ouvert de nouvelles portes dorées, pour m'avoir permis de retrouver ces montagnes qui me sont chères...

Je souhaite remercier également les membres de mon jury de thèse. Merci à Marie-Elisabeth Borredon pour m'avoir fait l'honneur de présider ce jury avec dynamisme et efficacité. J'adresse mes sincères remerciements à Hocine Kabir qui a bien voulu apporter une touche « industrielle » à ce jury et dont les remarques ne peuvent qu'apporter optimisme quant aux applications de nos travaux. Merci également à Laurent Falk d'avoir rapporté mon travail avec intérêt et enthousiasme. J'ai vraiment apprécié vos commentaires et les perspectives alléchantes qui se dessinent. Merci Hassan Peerhossaini, pour avoir rapporté mon manuscrit mais également pour toutes tes remarques judicieuses et tes conseils avisés dont j'ai eu la chance de bénéficier au cours de la thèse.

Une pensée également à l'équipe « intensification » du LGC dont je tiens à en remercier tous les membres. Les compétences diverses et variées font la force de cette équipe et enrichissent les échanges. Je remercie en particulier Laurent Prat pour m'avoir présentée à CharlyRobot et Nadine Gabas qui m'a initiée à la recherche dès mon stage de 3^{ème} année d'école. Un grand merci à Sébastien Elgue, fidèle au poste, et toujours disponible pour apporter son aide et débloquer quelques calculs.

Je ne concevais pas cette thèse sans expérimentations, merci à tous ceux qui font tourner les « manip » et sans qui elles ne seraient pas si fiables. Merci à Lucien Pollini qui effraie un peu au début mais dont l'expérience et les bonnes idées sont inestimables. Merci à Alain Müller pour avoir pris tant de soin et de temps à surfacer mes nombreuses plaques. Sans cela, les tests n'auraient pas aussi bien aboutis.

Je tiens bien sûr à remercier Franck Dunglas qui m'a donné une formation en raccords Swagelok de grande qualité et dont les pas de danse resteront gravés ! Enfin merci à tous les autres techniciens, Alec, Lahcen, Bernard, Ignace, Jean-Louis,...toujours de bonne humeur et prêts à dépanner quand on en a besoin.

Je tiens également à remercier Jean-François Fourmigué, expert en Fluent, et sans qui je n'aurai jamais pu réaliser la partie numérique de ces travaux. Son expertise est précieuse et ses conseils toujours très avisés. Merci !

L'implication de ces travaux dans deux projets, l'un du programme de l'ANR, RAPIC et l'autre du programme énergie du CNRS, EXTRAPOLIS, a apporté beaucoup. La fédération de disciplines différentes et d'organismes variés autour d'un même projet a permis d'enrichir considérablement ces travaux et constitue une sacrée expérience personnelle. Je remercie pour cela mes encadrants, Michel, Christophe et Patrice. Merci de m'avoir tant impliquée (et de m'avoir fait gagner tous ces miles !!). Comme le dit si bien cette citation de B. Franklin : « Tu me dis, j'oublie. Tu m'enseignes, je me souviens. Tu m'impliques, j'apprends »...

Merci également à tous les membres de ces deux projets, qui au fil des discussions et des réunions m'ont appris beaucoup. Merci Dominique Della Valle pour tes bonnes idées, tes encouragements et tes paroles réconfortantes, merci Hassan Peerhossaini pour tes conseils avisés, merci Raphaël Couturier pour tes questions tellement utiles !

Ces trois années ont permis également de nouer de belles amitiés. Laurie, Nicolas, Edgar, Amélie...Merci pour ces super moments passés en votre compagnie au bord des routes du Tour ! au coin d'une terrasse de café, au détour d'une scène ou à Thalès tout simplement !

Merci également à Nathalie, toujours de bon conseil et aux autres filles du bureau, Fahima, Emeline et Carole qui ont fait de ce grand bureau de Basso un endroit très agréable à vivre. Merci à Félicie qui m'a initiée à la polymérisation interfaciale, à Marianne toujours souriante et réconfortante, et à tous les autres doctorants qui font qu'il règne une super ambiance au laboratoire.

Enfin, merci à ceux qui sont toujours présents à mes côtés,
Marion, Gildas, Tata Annick et toute ma famille d'Est en Ouest,
Papa, Maman, merci pour tout, pour m'avoir mené jusqu'ici, pour m'avoir toujours
encouragée. Je n'aurai jamais fait tout ce chemin sans vous.

Enfin merci Yoan, pour ton amour, ton soutien de tous les jours et pour tout le reste...

Résumé

Lors de la mise en œuvre de synthèses exothermiques, les procédés batch ou semi-batch sont généralement limités par le transfert de chaleur. Afin de s'affranchir de cette limitation, il est proposé de coupler en un seul et unique appareil, la réaction et l'échange thermique. L'appareil étudié est un échangeur/réacteur fonctionnant en continu dont la structure est basée sur celle des échangeurs de chaleur à plaques : la plaque dans laquelle circule le fluide réactionnel est insérée entre deux plaques de refroidissement.

Le passage du batch au continu n'est pas sans difficultés et une des manières d'intensifier les transferts tout en conservant un temps de séjour suffisant (régime laminaire) est de structurer, en 2D, le chemin réactionnel. Le but de ces travaux est de caractériser l'influence de la géométrie des canaux sur les performances de l'échangeur/réacteur. Les caractérisations expérimentales, complétées par des simulations numériques (code CFD), concernent les pertes de charge, le mélange (mélange global et micromélange), les distributions de temps de séjour et les performances thermiques.

Les géométries testées sont au nombre de sept et sont définies par l'angle des coudes, leur rayon de courbure, la longueur droite entre deux coudes, le facteur de forme du canal (ratio entre sa largeur et sa hauteur) et son diamètre hydraulique.

Les caractérisations expérimentales et numériques ont permis de comprendre les mécanismes qui influencent les performances thermo-hydrauliques et le comportement des écoulements. Des corrélations reliant les critères de performance au nombre de Dean ont été établies et la démarche d'optimisation d'une géométrie en fonction des contraintes d'utilisation a pu être définie.

Les premiers pas vers l'extrapolation font l'objet de la dernière partie de ces travaux et présentent un enjeu important pour le développement industriel de ces technologies. Les résultats de cette étude ont souligné l'intérêt d'un paramètre adimensionnel caractéristique : le nombre de Dean interne, qui permet de conserver les performances thermo-hydrauliques et donc de prédire leur évolution lors du processus de changement de taille.

Mots-Clés : Intensification des procédés, Réacteur/échangeur, Canaux ondulés, Nombre de Dean, Extrapolation.

Table des matières

INTRODUCTION	1
CHAPITRE I	
ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE	7
I.1 LES ECHANGEURS/REACTEURS CONTINUS.....	7
I.1.1 REACTEURS CONTINUS OU DISCONTINUS ?.....	7
I.1.2 TRANSPOSITION DU MODE DISCONTINU VERS LE MODE CONTINU INTENSIFIE ..	9
I.1.2.1 Dynamique du réacteur.....	9
I.1.2.2 Ecoulement et mélange	10
I.1.2.3 Transfert thermique.....	10
I.1.2.4 Quelques exemples de réacteurs continus intensifiés.....	11
a. Le SDR – Spinning Disk Reactor.....	12
b. Les microréacteurs	13
c. Les mélangeurs statiques	14
d. Oscillatory Baffle Reactor (OBR) ou réacteur pulsé à chicane.....	16
I.1.3 LES ECHANGEURS/REACTEURS COMPACTS	17
I.1.3.1 Inserts tridimensionnels	19
a. Les ailettes.....	19
b. Les mousses métalliques.....	20
c. Mélangeurs de type HEV	21
I.1.3.2 Applications	22
a. Le réacteur OPR (Open Plate Reactor).....	23
b. Le réacteur ShimTec®	24
I.2 STRUCTURATION BIDIMENSIONNELLE D'UN CANAL ONDULE	26
I.2.1 ECOULEMENTS DANS LES CONDUITES RECTILIGNES	27
I.2.1.1 Ecoulement laminaire.....	27
a. Pertes de charge.....	27
b. Transfert thermique.....	29
I.2.1.2 Ecoulement turbulent	29
a. Pertes de charge.....	32
b. Transfert thermique.....	33
I.2.2 ECOULEMENTS SECONDAIRES	34
I.2.2.1 Phénomène des recirculations de Dean	34
I.2.2.2 Paramètres géométriques et nombre de Dean critique	37
I.3 SYNTHESE	41

CHAPITRE II

STRATEGIE SCIENTIFIQUE	43
II.1 L'ÉCHANGEUR/REACTEUR EN SiC.....	43
II.1.1 TECHNOLOGIE ET MATERIAU	43
II.1.2 PERFORMANCES DE L'ÉCHANGEUR/REACTEUR	45
II.1.2.1 Performances thermiques	45
II.1.2.2 Mélange et écoulement	46
II.1.2.3 Réactions tests.....	48
a. Oxydation du thiosulfate de sodium par le peroxyde d'hydrogène	48
b. Réaction d'hydrosilylation	49
II.1.3 ENJEUX ET PROBLEMATIQUE	50
II.2 LE PROJET CNRS, EXTRAPOLIS	50
II.2.1 OBJECTIF DU PROJET	50
II.2.2 PRINCIPE DE SIMILITUDE	51
II.3 LE PROJET ANR, RAPIC.....	52
II.3.1 DESCRIPTIF DU PROJET	52
II.3.1.1 Objectifs	52
II.3.1.2 Cahiers des charges	53
II.3.2 OUTIL THERMO-HYDRAULIQUE GLOBAL.....	54
II.3.3 CONCLUSIONS	57
II.4 CONCEPTION ET MISE EN ŒUVRE DES MAQUETTES.....	57
II.4.1 CHOIX DES MATERIAUX.....	58
II.4.2 MISE EN ŒUVRE.....	61
II.4.2.1 Le CharlyRobot	61
II.4.2.2 Tests d'étanchéité	64
II.4.2.3 Assemblage	65
II.4.3 CHOIX DES GEOMETRIES.....	66
II.4.4 BANC D'ESSAI.....	68
II.5 SIMULATION NUMERIQUE	72
II.5.1 MAILLAGE	72
II.5.2 MODELE	75
II.6 SYNTHÈSE	76

CHAPITRE III**CARACTERISATION DE L'HYDRO-DYNAMIQUE.....79****III.1 DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET METHODES79**

III.1.1 CHOIX ET PRINCIPE DE LA METHODE POUR LA DETERMINATION DES DTS
79

III.1.2 DESCRIPTION DES DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX..... 82

III.1.2.1 Pertes de charge82

III.1.2.2 Distribution du temps de séjour84

a. Instrumentation et protocole opératoire84

b. Traitement et modélisation 88

III.2 RESULTATS EXPERIMENTAUX91

III.2.1 PERTES DE CHARGE..... 91

III.2.1.1 Conditions opératoires.....91

III.2.1.2 Résultats expérimentaux.....92

a. Comparaison théorie/expérience pour un tube droit92

b. Etude paramétrique94

c. Effet de la persistance97

III.2.1.3 Synthèse100

III.2.2 LA DISTRIBUTION DU TEMPS DE SEJOUR (DTS)..... 101

III.2.2.1 Conditions opératoires.....101

III.2.2.2 Résultats expérimentaux.....102

a. Canal de référence.....102

b. Influence de la géométrie103

c. Influence du facteur de forme106

III.2.2.3 Synthèse..... 108

III.3 SYNTHESE DE L'ETUDE DE L'HYDRODYNAMIQUE.....108

CHAPITRE IV

ETUDE THERMO-HYDRAULIQUE.....	111
IV.1 CARACTERISATION DES NIVEAUX DE MELANGE.....	111
IV.1.1 CARACTERISATION DU MICROMELANGE.....	112
IV.1.1.1 Principe de la méthode.....	112
IV.1.1.2 Dispositif expérimental et conditions opératoires.....	114
IV.1.1.3 Résultats expérimentaux.....	117
IV.1.1.4 Conclusions et perspectives.....	120
IV.1.2 DETERMINATION DU MELANGE GLOBAL.....	120
IV.1.2.1 Principe de la méthode.....	120
IV.1.2.2 Dispositif expérimental et conditions opératoires.....	121
IV.1.2.3 Résultats expérimentaux.....	122
IV.1.2.4 Synthèse.....	125
IV.1.3 COMPORTEMENT DE DEUX LIQUIDES IMMISCIBLES.....	126
IV.1.3.1 Dispositif expérimental et analytique.....	126
IV.1.3.2 Conditions opératoires.....	127
IV.1.3.3 Résultats expérimentaux.....	127
IV.2 CARACTERISATION DES PERFORMANCES THERMIQUES	129
IV.2.1 DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET CONDITIONS OPERATOIRES.....	129
IV.2.2 RESULTATS EXPERIMENTAUX.....	131
IV.2.2.1 Coefficient de transfert de chaleur global.....	131
IV.2.2.2 Etude paramétrique.....	135
a. Effet de la géométrie.....	135
b. Etablissement de corrélations.....	137
IV.2.2.3 Synthèse.....	139
IV.3 SYNTHESE DE L'ETUDE THERMO-HYDRAULIQUE.....	140

CHAPITRE V**OPTIMISATION ET ETUDE DE SENSIBILITE DES PARAMETRES**

GEOMETRIQUES	143
V.1 COMPILATION DES RESULTATS.....	143
V.1.1 TRANSFERT THERMIQUE VS. PERTES DE CHARGE.....	145
V.1.2 TEMPS DE MELANGE VS. PUISSANCE DE POMPAGE.....	148
V.1.3 DISTRIBUTION DE TEMPS DE SEJOUR VS. PERTES DE CHARGE.....	151
V.1.4 CONCLUSION.....	153
V.2 EXEMPLES D'APPLICATION.....	154
V.2.1 CAHIER DES CHARGES INDUSTRIEL.....	154
V.2.2 SIMULATION DE LA MISE EN ŒUVRE D'UNE REACTION EXOTHERMIQUE	158
V.2.2.1 Réaction et conditions opératoires.....	158
V.2.2.2 Modélisation dans les maquettes.....	159
V.2.2.3 Modélisation dans un réacteur discontinu.....	161
V.3 SYNTHESE DU CHAPITRE	163

CHAPITRE VI

VERS UNE DEMARCHE D'EXTRAPOLATION	165
VI.1 CONTRAINTES TECHNOLOGIQUES.....	165
VI.1.1 FABRICATION DES CANAUX	166
VI.1.2 GEOMETRIES DES MAQUETTES	167
VI.2 CARACTERISATIONS DES PERFORMANCES.....	168
VI.2.1 DISTRIBUTION DU TEMPS DE SEJOUR	168
VI.2.2 CARACTERISATION DU MELANGE	172
VI.2.3 CARACTERISATION DES PERTES DE CHARGE	178
VI.2.4 PERFORMANCES THERMIQUES.....	182
VI.2.4.1 Coefficient de transfert de chaleur global	182
VI.2.4.2 Nombre adimensionnels et corrélations.....	186
VI.2.4.3 Conclusion.....	191
VI.2.5 SYNTHESE DES RESULTATS	191
VI.3 INVARIANTS ET APPLICATION NUMERIQUE	192
VI.4 SYNTHESE DU CHAPITRE	195
SYNTHESE GENERALE	199
BIBLIOGRAPHIE.....	205
NOMENCLATURE	211
ANNEXE A – Géométrie des canaux	215
ANNEXE B – Graphes de DTS expérimentales	216
ANNEXE C – Données expérimentales concernant le mélange global.....	220

INTRODUCTION

« *Le temps de la réflexion est une économie de temps* »
Publilius Syrus

Augmenter la productivité, économiser du temps et de l'argent sont au cœur des processus d'amélioration des procédés quelque soit le domaine d'investigation et nécessitent des étapes de recherche et développement. L'intensification des procédés n'est donc pas un concept nouveau. Mais elle n'a émergé, en tant que discipline du génie chimique, qu'à partir des années 80.

Une multitude de définitions la caractérisent, nous n'en retiendrons ici que quelques unes :

- l'intensification des procédés est « la mise au point d'installations extrêmement compactes, réduisant ainsi le nombre d'unités opérationnelles et les coûts d'investissement » (*Ramshaw, 1983*);
- l'intensification des procédés est « la stratégie de réduction de taille d'une installation nécessaire pour atteindre des objectifs de production donnés » (*Cross & Ramshaw, 1986*);
- l'intensification des procédés est « le développement de techniques et d'appareils innovants qui offrent des améliorations notables dans le domaine du génie chimique diminuant considérablement les volumes d'équipements, la consommation d'énergie et/ou la formation de déchets et conduisant finalement à des technologies durables moins coûteuses et plus sûres » (*Stankiewicz & Moulijn, 2000*);
- l'intensification des procédés réfère « aux technologies qui remplace les équipements ou procédés imposants, coûteux et gourmands en énergie par des installations plus petites, plus économiques et qui combinent plusieurs opérations unitaires en un seul appareil » (*Tsouris & Porcelli, 2003*);
- l'intensification des procédés « fournit des principes innovants pour le design des procédés et des équipements, avantageux (au moins d'un facteur deux) vis-à-vis de la productivité, des coûts d'investissement et d'exploitation, de la qualité, des déchets, de la sécurité, etc... » (*ERPI, 2008*);
- l'intensification des procédés représente « une démarche multidisciplinaire intégrée couplant les aspects recherche et développement en chimie (produits) et en génie chimique (procédés) de manière à envisager l'émergence de technologies innovantes encore non éprouvées industriellement », (*Becht et al., 2008*).

L'interprétation de l'intensification des procédés ainsi que les méthodes de mise en œuvre sont donc diverses et variées. Il peut s'agir d'une intensification dimensionnelle (miniaturisation des équipements, « compacification »), d'une approche multidisciplinaire allant de la conception du produit à la mise en route de l'usine de production, d'une intensification fonctionnelle (couplage de plusieurs opérations unitaires en un seul et même équipement) ou de la combinaison de plusieurs de ces démarches entre elle, toutes ayant

pour objectif d'optimiser la productivité, la dépense énergétique et les coûts d'investissement et d'exploitation.

Le cas de la mise en œuvre de réactions est intéressant. En effet, les synthèses chimiques dépendant toutes de la température, il est nécessaire de maîtriser les transferts de chaleur. Les résultats escomptés sont entre autres :

- un meilleur contrôle de la température du milieu réactionnel ;
- un renforcement de la sécurité du procédé et des opérateurs ;
- de meilleures sélectivités ;
- des cinétiques réactionnelles plus rapides.

L'intensification fonctionnelle ou multifonctionnalité des appareils, dans ce cas le couplage d'un réacteur et d'un échangeur de chaleur dans la même unité, est alors tout à fait judicieuse. Il en est de même pour la miniaturisation des appareils qui permet d'accroître le rapport surface/volume favorable à l'échange de chaleur. Cependant, l'efficacité des transferts thermiques est une condition nécessaire mais non suffisante pour conduire des synthèses chimiques. Le mélange ne doit pas être limitant notamment pour les cinétiques rapides, le temps de séjour doit être assez long pour atteindre des conversions convenables et l'écoulement doit se rapprocher au maximum d'un écoulement piston afin d'éviter les zones d'accumulation et/ou les courts-circuits. La géométrie ou la structure de l'échangeur de chaleur doit donc être adaptée à la chimie. Mais deux questions principales se posent :

- Comment concilier temps de séjour et écoulement piston dans des appareils qui ne soient pas démesurément longs ?
- Comment concilier régime laminaire et intensification des transferts de matière, de chaleur et de quantité de mouvement ?

Pour y répondre, l'idée générale est de créer des instationnarités au sein de l'écoulement et de la surface d'échange. Deux voies s'offrent alors à nous :

- détourner les fonctions d'origine de dispositifs existants (mousses métalliques, inserts tridimensionnels,...) ;
- développer des géométries spécifiques pour la partie réactionnelle et ne conserver que la structure à plaques de l'échangeur de chaleur.

Même si les technologies d'inserts ou de mousses métalliques ont l'avantage d'exister et constituent des supports de catalyseurs intéressants, leurs coûts de fabrication et d'exploitation (pertes de charge importantes, encrassement et/ou colmatage,...) sont bien souvent trop élevés. Le projet global dans lequel s'insère cette thèse est donc de proposer une technologie compétitive et viable économiquement dont la structure est basée sur celle des échangeurs à plaques dans lesquels les plaques de refroidissement (ou de chauffe) sont placées en alternance avec des plaques réactionnelles dédiées à la chimie. Ces dernières sont « re-pensées » entièrement : le canal réactionnel gravé dans la plaque est structuré en 2 dimensions. L'appareil ainsi défini doit répondre à plusieurs spécifications en termes de performances certes, mais également de :

- polyvalence : la technologie ne doit pas être dédiée à une seule réaction mais à un ensemble d'utilisations ;
- flexibilité : l'appareil doit supporter des variations de débit non négligeables et pouvoir basculer facilement d'un régime d'écoulement à un autre ;

- compétitivité : des géométries trop complexes entraîneraient un surcoût d'exploitation et d'investissement pour des niveaux de performances non requis forcément ;
- mise à l'échelle : les performances ne doivent pas chuter lors de l'extrapolation.

Il est nécessaire de veiller à respecter le compromis objectifs d'efficacité ou de productivité et capacités d'investissement. Avant de raisonner sur l'appareil global, la compréhension des phénomènes thermo-hydrauliques à l'échelle du fluide réactionnel est primordiale afin d'espérer optimiser au mieux ce couple rendement/coût. C'est l'objectif de cette thèse intitulée « **étude de l'influence de la géométrie des canaux sur les performances d'un échangeur/réacteur** ». Le canal réactionnel, dont l'échelle de taille est de l'ordre du millimètre, est structuré en deux dimensions et consiste en un enchaînement de coudes et de longueurs droites. On est alors en droit de se demander :

- Quel est l'impact de la géométrie des coudes et de leur enchaînement sur les performances thermo-hydrauliques ?
- Quel est l'impact de la taille du canal sur ces performances ?

Les réponses à ces interrogations permettront de comprendre les mécanismes de performance et le comportement des écoulements dans les canaux ondulés. Ces données vont permettre ainsi de choisir la géométrie optimale vis-à-vis des contraintes inhérentes aux cahiers des charges industriels. Sans cela, le risque est grand de disposer de prototypes très (trop) performants qui ne soient jamais industrialisés. Ce constat est à l'origine du lancement d'un programme de recherche soutenu par l'ANR, dénommé RAPIC et d'un programme interdisciplinaire énergie du CNRS, baptisé EXTRAPOLIS, dont les objectifs sont d'établir les critères de conception et d'extrapolation de réacteurs-échangeurs intensifiés respectant les contraintes économiques : c'est tout l'enjeu de cette thèse.

La problématique de cette étude s'articule autour de cinq points :

- les paramètres géométriques : un grand nombre de paramètres, parfois redondants, peuvent être utilisés pour décrire un canal ondulé. Le choix des paramètres pertinents est important ;
- les critères de performance : quels sont ceux nécessaires à la bonne compréhension des phénomènes et à la caractérisation complète des performances de l'appareil ?
- l'optimisation : à partir des critères de performance et des paramètres géométriques, comment choisir la géométrie optimale ?
- l'extrapolation : comment évoluent les performances lors du processus de changement de taille, notamment pour la mise à l'échelle industrielle ?
- le développement industriel : la géométrie développée répond-elle aux critères industriels et aux cahiers des charges en termes de performances escomptées, de productivité et de rentabilité ?

Ce travail de thèse a été structuré autour de ces axes d'étude. Cependant, avant de décrire plus en détail l'organisation des travaux, nous tenons à en préciser les bornes.

Le type et les méthodes des caractérisations expérimentales dépendent essentiellement des propriétés du fluide à traiter. Nous avons choisi de travailler avec un écoulement liquide monophasique. Bien que les écoulements diphasiques gaz/liquide, liquide/liquide et liquide/solide représentent de nombreuses applications industrielles, leur caractérisation

nécessitait une charge de travail supplémentaire équivalente à celle présentée dans ce manuscrit et des modifications importantes concernant les bancs d'essai. Cependant, des tests élémentaires ont été tout de même réalisés en liquide/liquide et deux post-doctorats sont en cours sur le sujet au sein de l'équipe intensification du LGC. De la même manière, l'étude du processus de changement de taille, qui correspond à une partie importante de ce manuscrit, ne constitue que les prémices de l'extrapolation vers les échelles industrielles. En effet, les changements de taille au-delà de ceux étudiés nécessitent de mettre en place de nouveaux protocoles de fabrication des pilotes, ainsi que des installations et des équipements expérimentaux plus imposants, dont les caractéristiques de fonctionnement dépassent celles de l'échelle du laboratoire. Enfin, la viabilité économique de l'appareil intensifié est au cœur de ces travaux, puisque la structure elle-même de l'échangeur/réacteur à plaques structurés en 2 dimensions a été pensée dans cette optique. Cependant, les études de rentabilité concernant les matériaux et les technologies de fabrication ne sont pas traités ici mais font partie intégrante des projets associés à la thèse et notamment de celui intitulé RAPIC.

A partir de là, les travaux sont organisés comme suit :

En plus d'être des appareils innovants de par leur multifonctionnalité et leur miniaturisation, les échangeurs/réacteurs impliquent de travailler en mode continu. Dans le premier chapitre, l'état-de-l'art s'attarde donc sur la transposition des modes de production du discontinu vers le continu et dresse le bilan des appareils existants. Une attention particulière est portée sur les échangeurs/réacteurs compacts et les différentes technologies qui s'y rapportent. La structuration 2D du chemin réactionnel étant le mode d'intensification retenu, une partie de la bibliographie est consacrée aux écoulements dans les canaux ondulés et aux paramètres géométriques qui s'y réfèrent.

Le chapitre II replace les travaux de thèse dans leur contexte scientifique et stratégique que sont les deux projets financés par l'ANR (RAPIC) et le programme énergie du CNRS (EXTRAPOLIS). Les résultats expérimentaux, prometteurs, obtenus dans un réacteur/échangeur pilote du LGC, ont fait naître un certains nombres d'interrogations quant au comportement des écoulements et à la compréhension des phénomènes qui s'y déroulent. Pour y répondre, des outils expérimentaux et numériques ont été développés. Un certain nombre de maquettes, de géométries différentes, ont été conçues et mises au point. Ces étapes sont également décrites dans ce chapitre.

Par la suite (chapitres III et IV), les dispositifs ainsi que les résultats liés à chaque caractérisation expérimentale sont détaillés. Celles-ci sont au nombre de cinq et concernent :

- les pertes de charge ;
- les distributions du temps de séjour ;

ces données permettent de connaître et de comprendre l'hydrodynamique de l'écoulement (chapitre III).

- Les niveaux de mélange, à l'échelle globale surtout, mais également le micromélange et le comportement lors du transport de deux liquides immiscibles ;
- les performances thermiques.

L'étude thermo-hydraulique est nécessaire pour connaître l'efficacité des transferts de matière, de quantité de mouvement et de chaleur (chapitre IV).

Pour chaque caractérisation, les géométries des canaux ondulés sont comparées entre elles. Cependant, il est nécessaire par la suite de synthétiser l'ensemble des résultats, non plus par type de caractérisation mais selon les critères géométriques, puis de confronter entre elles les performances de chacune des géométries. C'est l'objet du chapitre V. La constitution de cette base de données a pour objectif d'aider à la conception des plaques réactionnelles, insérées dans les échangeurs/réacteurs, en choisissant les paramètres géométriques caractéristiques des canaux ondulés les mieux adaptés aux contraintes d'utilisation. Afin d'illustrer ces propos, la seconde partie de ce chapitre s'attarde sur deux cas modèles relatifs à la mise en œuvre de synthèses chimiques dans les canaux ondulés.

A ce stade, l'influence des paramètres géométriques sur les performances thermo-hydrauliques et le comportement de l'écoulement est connue. Les informations nécessaires au choix de la géométrie optimale sont à disposition. La dernière étape concerne donc la mise à l'échelle et l'étude de l'évolution des performances lors du changement de taille. Les premiers pas vers cette démarche d'extrapolation font l'objet du sixième et dernier chapitre. Après avoir fait un point sur les contraintes technologiques de fabrication et les paramètres géométriques étudiés, les performances dans les maquettes de différentes tailles sont caractérisées. Les corrélations établies à partir des résultats expérimentaux ainsi qu'une application numérique terminent ce chapitre.

La synthèse globale clôture finalement le manuscrit. Elle rassemble les conclusions partielles de chaque chapitre, les résultats marquants ainsi que les perspectives d'étude entrevues au cours de cette thèse.

CHAPITRE I ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

Les technologies d'échangeurs/réacteurs continus sont nombreuses et variées, à l'échelle du laboratoire ou déjà à l'échelle industrielle. Après avoir rappelé les exigences dues à la transposition du mode discontinu vers le mode continu, ce chapitre fait la synthèse des technologies existantes et de leurs applications. Les aspects théoriques et techniques concernant l'intensification des transferts par structuration des canaux seront ensuite traités.

I.1 LES ECHANGEURS/REACTEURS CONTINUS

I.1.1 REACTEURS CONTINUS OU DISCONTINUS ?

Un des critères de classification des réacteurs de synthèse chimique concerne leur mode de fonctionnement : continu ou discontinu.

Dans un réacteur discontinu idéal, les réactifs sont initialement chargés puis parfaitement mélangés, la transformation chimique se déroule et les produits réactionnels sont évacués. Lors de ce fonctionnement en régime non stationnaire, la composition évolue au cours du temps. En revanche, à un instant t , elle est uniforme au sein du réacteur. Dans certains cas, un des réactifs est introduit progressivement dans le réacteur ou un des produits est éliminé au cours de la transformation chimique. Ce mode d'opération est appelé semi-continu.

Les réacteurs continus peuvent être, quant à eux, représentés par deux modèles idéaux : le réacteur de type piston (ou réacteur tubulaire) et le réacteur parfaitement agité (figure I.1).

Dans le réacteur piston, chaque espèce chimique progresse en même temps que son environnement le long du tube tout en se transformant progressivement. Chaque molécule a donc le même temps de séjour au sein de l'appareil.

Dans le réacteur parfaitement agité, comme son nom l'indique, les réactifs sont parfaitement mélangés dès leur introduction et les concentrations des différentes espèces chimiques sont uniformes et égales aux concentrations de sortie. Il existe dans cet appareil une discontinuité des concentrations à l'entrée du réacteur.

Les mises en équation classiques à partir des bilans matière et enthalpiques sont détaillées dans l'ouvrage d'O. Levenspiel (1999).

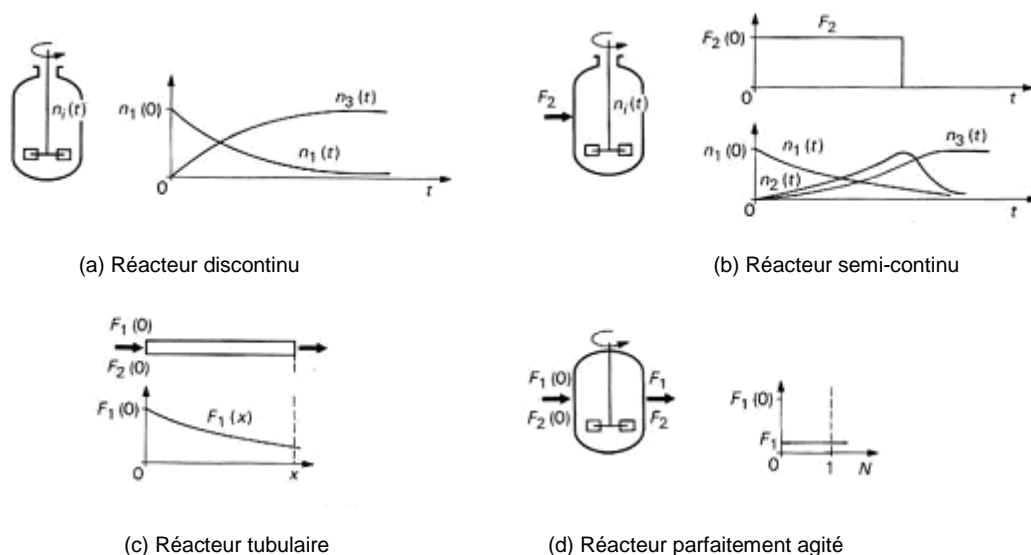


Figure 1.1 : Différents types de réacteurs et évolution des concentrations (Trambouze, 1993).

Alors que la plupart des synthèses chimiques génèrent ou absorbent de la chaleur, les capacités de chauffe ou de refroidissement des réacteurs discontinus sont souvent limitées voire insuffisantes vis-à-vis des enthalpies de réaction rencontrées. Ainsi, pour un réacteur à double enveloppe, le coefficient global de transfert de chaleur est estimé entre 60 et $350 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ (Trambouze, 1993). Cette valeur est souvent trop faible et pour y remédier la double-enveloppe peut être remplacée par d'autres dispositifs de refroidissement (serpentin interne ou externe, échangeur externe,...). Cependant, même si le coefficient de transfert est amélioré (700 à $800 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$), le rapport entre la surface d'échange et le volume de ces dispositifs reste faible ($10 \text{ m}^2\cdot\text{m}^{-3}$) et leur présence peut représenter une gêne pour le mélange du milieu réactionnel.

En règle générale, la solution consiste à couler un des réactifs afin de maîtriser la quantité de chaleur générée ou absorbée par la réaction ou à utiliser un solvant comme tampon thermique. Ces deux opérations ont malheureusement un coût en termes de sélectivité, de durée de réaction ou de dispositif de séparation en aval du réacteur.

De même, les réacteurs discontinus sont caractérisés par un transfert de matière limité et inhomogène (Stitt, 2002). L'ordre de grandeur du taux de dissipation énergétique, ε , dans ces réacteurs se trouve autour de $10 \text{ W}\cdot\text{kg}^{-1}$ (Schütz, 1988 ; Phillips et al. 1997). On peut espérer obtenir une bonne sélectivité si le temps de réaction est supérieur au temps caractéristique de diffusion moléculaire, t_D :

$$t_D = 2 \cdot \left(\frac{V}{\varepsilon}\right)^{0,5} \cdot \operatorname{arcsinh}(0,05 \cdot Sc) \quad (I-1)$$

Si l'on considère un temps de réaction de l'ordre de la milliseconde, le taux de dissipation énergétique nécessaire devrait être alors d'environ $100 \text{ W}\cdot\text{kg}^{-1}$, ce qui n'est pas réalisable en pratique. Cette comparaison sommaire montre que dans le cas d'une réaction rapide, le réacteur discontinu ne permettra pas d'obtenir la meilleure sélectivité possible, nécessitant donc, comme précédemment, des étapes ultérieures de séparation.

Enfin, le couplage entre faible transfert thermique et faible transfert de matière est également préjudiciable vis-à-vis de la sécurité du procédé. Le premier incite à réduire les températures

opératoires pour pallier la mauvaise évacuation de la chaleur et éviter le démarrage de réactions secondaires. Le second conduit à une mauvaise homogénéisation du milieu réactionnel engendrant des zones d'accumulation de réactifs, donc la possible formation de points chauds susceptibles de déclencher des emballements thermiques (*Stoessel, 1993*).

Utiliser un réacteur semi-continu et optimiser sa coulée permettent d'éviter l'accumulation des réactifs et de mieux contrôler l'évolution du réacteur en cas de dérive de température (*Stoessel, 2006 ; Singh, 1993*) mais les performances de transfert de matière restent toujours identiques à celles d'un réacteur discontinu. Cependant, dans les domaines de la chimie fine et de la pharmacie, chaque campagne de fabrication comporte en général plusieurs étapes de synthèse chimique et chaque procédé est conçu pour accueillir plusieurs campagnes, allant de quelques jours à plusieurs semaines, au cours de sa vie. En d'autres termes, un réacteur n'est pas dévolu à un seul produit.

Les réacteurs discontinus sont flexibles et polyvalents (*Shelat & Sharatt, 2004*), leurs modes opératoires sont bien connus et maîtrisés et le temps de séjour peut être aussi long que nécessaire.

C'est sans doute pour ces raisons et malgré les limitations des transferts que les réacteurs discontinus sont à l'origine de plus de 50% de la production chimique mondiale (*Phillips et al. 1997 ; Stitt, 2002*).

I.1.2 TRANSPOSITION DU MODE DISCONTINU VERS LE MODE CONTINU INTENSIFIE

Une des solutions envisagées pour s'affranchir des contraintes environnementales, de sécurité et de production dans les réacteurs discontinus est d'utiliser des réacteurs continus intensifiés. Leur principale caractéristique est d'intégrer en une seule unité plusieurs fonctionnalités. De nombreux exemples sont disponibles dans la littérature et les solutions technologiques proposées sont diverses et variées. Cependant, ces appareils ont en commun certaines propriétés en termes de dynamique du réacteur, de mélange, de caractérisation des écoulements et de transfert thermique.

I.1.2.1 Dynamique du réacteur

Les volumes de réactifs et de produits dans les réacteurs continus intensifiés sont réduits et peuvent être divisés jusqu'à un facteur 100 (*Stankiewicz & Moulijn, 2002*). Les avantages en matière de sécurité sont donc évidents ; les catastrophes telles que celles de Flixborough ou de Bhopal ont démontré les conséquences dramatiques d'une défaillance lorsque de gros volumes réactionnels sont mis en jeu (*Hendershot, 2000*). En outre, les temps caractéristiques dans de tels appareils sont plus faibles (temps de séjour de quelques secondes contre plusieurs heures dans les réacteurs discontinus) ; les cinétiques classiques de réaction sont modifiées permettant la mise en œuvre de conditions opératoires non envisageables en réacteur discontinu classique, les procédures de démarrage et d'arrêt sont simplifiées et les temps de mise sur le marché sont écourtés, notamment pour les applications en chimie fine et pharmaceutique.

I.1.2.2 Ecoulement et mélange

Pour améliorer la sécurité des appareils et la sélectivité des réactions, il est nécessaire de travailler avec un écoulement parfaitement piston. Une attention particulière doit donc être portée aux garnissages internes et au design des réacteurs. Ce type d'écoulement permet d'éviter la formation de volumes morts ou stagnants et/ou de zones d'accumulation des réactifs qui engendreraient des pertes de sélectivité et la possible formation de points chauds.

De plus, le mélange et en particulier le micromélange ont une grande importance vis-à-vis de la qualité des produits réactionnels, notamment pour les réactions dont le temps caractéristique est proche du temps de micromélange, c'est-à-dire pour les réactions rapides voire instantanées. La détermination de la position et de la géométrie de l'injection sont donc deux étapes primordiales pour assurer un bon mélange. Dans le cas de réactions diphasiques (gaz-liquide ou liquide-liquide), maîtriser l'injection est nécessaire pour contrôler la génération de la phase dispersée et obtenir un transfert de matière optimal.

A ce stade, on est en mesure de s'interroger sur la manière dont on va pouvoir combiner *écoulement piston*, favorisé lorsque le nombre de Reynolds est grand, avec *temps de séjour* suffisant pour la chimie.

C'est en travaillant sur la géométrie des réacteurs continus intensifiés que l'on peut espérer répondre à cette question, l'objectif étant d'atteindre des critères d'écoulement et de mélange convenables tout en abaissant au maximum le nombre de Reynolds pour assurer un temps de séjour suffisant.

I.1.2.3 Transfert thermique

Les réactions chimiques dépendent toutes plus ou moins de la température. Par conséquent, évacuer la chaleur dégagée par une réaction exothermique est une opération nécessaire au bon fonctionnement du réacteur afin d'éviter la formation de produits secondaires ou un emballement thermique. Les réacteurs discontinus sont donc équipés de double enveloppe ou de serpentins (internes ou externes). Cependant, le site de transfert de la chaleur et le site réactionnel restent trop éloignés pour garantir une conduite sûre et optimale et c'est donc souvent le mode semi-continu ou l'ajout d'un solvant tampon qui prennent le relais du réacteur discontinu traditionnel.

L'objectif de l'intensification thermique dans les réacteurs continus est de réduire cette distance au maximum afin d'évacuer ou d'apporter la chaleur aussi vite que possible, là où elle est générée ou absorbée, i.e. en combinant réaction et transfert de chaleur dans une seule et unique unité : c'est le principe même des échangeurs/réacteurs (*Anxionnaz et al, 2008 ; Ferrouillat et al, 2006b*).

Cette technologie innovante permet d'envisager une conduite plus sûre du procédé en contrôlant la température du milieu réactionnel, une sélectivité accrue grâce au maintien de la réaction à température constante et une réduction des produits secondaires. Le tableau I.1 compare les performances escomptées de différents appareils.



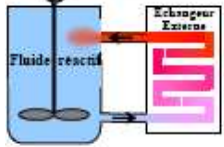
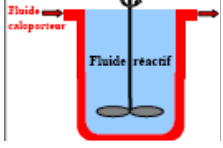
Appareils	Réacteurs compacts continus intensifiés	Réacteur tubulaire continu	Réacteur avec échange externe	Réacteur agité discontinu
Schéma de principe				
Performances thermiques h ($W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$)	5000	500	1000	400
Temps de séjour maximum (s)	Quelques minutes	Quelques minutes	Quelques heures	Quelques heures
Compacité de l'appareil S/V ($m^2 \cdot m^{-3}$)	800	400	10	2,5
Facteur d'intensification hS/V ($kW \cdot m^{-3} \cdot K^{-1}$)	4000	200	10	1

Tableau I.1 : Comparaison des performances pour différents types de réacteurs (Ferrouillat et al, 2006b).

A la lecture de ce tableau, on perçoit l'intérêt des réacteurs continus intensifiés, qui réside donc dans le fait qu'ils possèdent un grand rapport surface/volume par rapport aux réacteurs traditionnels. Ceci est d'autant plus vrai que lorsque le volume du réacteur discontinu augmente pour une production plus importante, son rapport S/V diminue de façon inversement proportionnelle à son diamètre. Cette caractéristique de grand rapport surface/volume pour les échangeurs/réacteurs va permettre de mettre en œuvre des réactions fortement exothermiques dans les réacteurs continus intensifiés tout en opérant dans des conditions sûres et maîtrisées.

En revanche, le temps de séjour est plus court en mode continu. Ainsi pour qu'il soit suffisant par rapport à la chimie, il faudra travailler dans des régimes hydrauliques proches du régime laminaire et on est donc en droit de s'interroger sur la manière dont les transferts vont pouvoir être intensifiés.

La possibilité de travailler avec des conditions opératoires plus sévères et donc des cinétiques chimiques accélérées apporte une première réponse. Ainsi, quand il fallait plusieurs heures dans un réacteur discontinu classique, seulement quelques secondes s'avèrent suffisantes dans les appareils intensifiés (Anxionnaz et al, 2009a ; Lomel et al, 2006).

I.1.2.4 Quelques exemples de réacteurs continus intensifiés

La littérature sur les réacteurs continus intensifiés est riche et certains procédés industriels font déjà appel à ce type de technologie. Le paragraphe suivant dresse le bilan des technologies les plus courantes.

a. Le SDR – *Spinning Disk Reactor*

Le SDR (*Jachuck, 2002 ; Costello, 2004*) est composé d'une plaque rotative horizontale de 60 à 500 mm de diamètre mise en rotation par un moteur dont la vitesse de rotation varie de 100 à 6000 tr·min⁻¹. Cette plaque est refroidie ou chauffée par un fluide circulant en son sein comme le montre la figure I.2. Cette technologie utilise les forces centrifuges pour produire des films minces à la surface du disque afin d'intensifier les transferts.

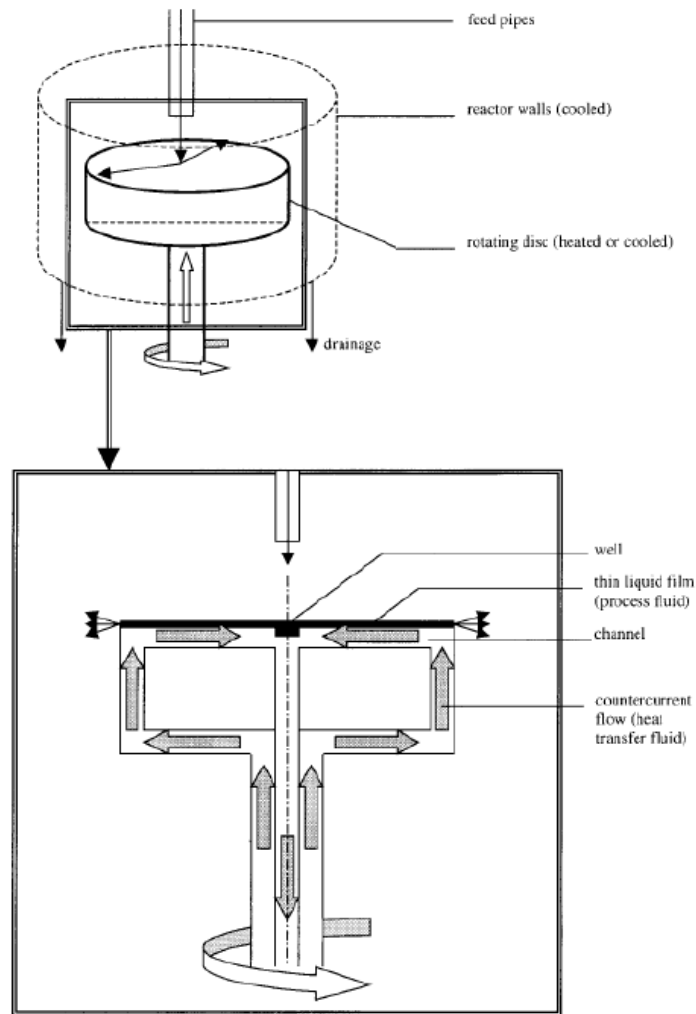


Figure I.2 : Schéma de principe du SDR (*Oxley et al, 2000*).

Les réactifs sont introduits au centre et se répartissent radialement sur toute la surface du disque en rotation, ils traversent rapidement cette zone en formant un film mince (la réaction se déroule durant cette étape) et les produits sont récupérés dans les collecteurs situés sur les côtés du dispositif.

La faible épaisseur du film (typiquement 100 μm) permet d'atteindre des coefficients de transfert de chaleur très élevés ($14 \text{ kW}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$) et de très bons coefficients de transfert massique aussi bien pour des réactions en phase homogène liquide qu'en phase hétérogène gaz/liquide ou liquide/solide.

La température au sein du SDR est parfaitement contrôlée. Le procédé est donc plus sûr et permet de travailler à plus haute température, compensant ainsi le fait que les temps de

séjour soient courts. L'écoulement est de type piston et il est possible de revêtir le disque de catalyseur (*Jachuck, 2002*). La technologie du SDR permet de mettre en œuvre une large gamme de réactions (*Oxley, 2000 ; Tsouris & Porcelli, 2003*) telles que des synthèses organiques rapides suivies de précipitations, des polymérisations ou la production de nano- et micro-particules. Les débits de production sont comparables à ceux requis dans les domaines de la chimie fine ou de la pharmacie ($8 \text{ tonnes} \cdot \text{h}^{-1}$).

Cependant, le principe du SDR repose sur un disque en rotation dont le diamètre est d'autant plus grand que le temps de séjour requis est long. Or pour des raisons de sécurité, les industriels sont encore réticents quant à l'utilisation d'équipements rotatifs.

b. Les microréacteurs

La littérature sur le sujet est très riche. Ce paragraphe ne se veut donc pas exhaustif. De nombreuses réactions ont déjà été mises en œuvre pour caractériser leurs performances que ce soit en phase liquide homogène, en gaz/liquide ou encore en gaz/liquide/solide ; à l'échelle du laboratoire ou à l'échelle industrielle (*Kashid & Kiwi-Minsker, 2009 ; Brandner et al, 2007 ; Hessel et al, 2005 ; Commenge et al, 2005 ; Jähnisch et al, 2004 ; Hessel & Löwe, 2003b ; Jensen, 2001 ; Löwe & Ehrfeld, 1999*). Les principales caractéristiques des microréacteurs sont : un faible volume réactionnel (quelques μL) ; des aires spécifiques d'interface atteignant $50000 \text{ m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$ en liquide-liquide et $20000 \text{ m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$ en gaz-liquide ; des temps de mélange qui peuvent être divisés par 1000 (*Hessel & Löwe, 2003a*) et enfin un rapport surface/volume de l'ordre de $10000 \text{ m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$, ce qui leur confère de très grandes performances en transfert de chaleur (*Schubert et al., 2001*).

En Allemagne, Merck fut le premier à utiliser les microréacteurs dans son usine de production pour une réaction organométallique très sensible au mélange. Le rendement a été amélioré de 23% par rapport au procédé traditionnel discontinu (figure 1.3 ; *Bayer et al, 2005*).



Figure 1.3 : Usine de production (Merck, Allemagne), les micromélangeurs ont remplacé l'ancien procédé discontinu.

Les microréacteurs présentent des avantages en termes de sécurité (contrôle de la température, volumes réduits) et de sélectivité notamment grâce à l'intensification des transferts massiques et thermiques. Cependant, de nombreux défis sont encore à relever pour généraliser l'utilisation des microréacteurs (Bayer *et al*, 2005 ; Jensen, 2001 ; Hessel & Löwe, 2003c). Dans le cas des réactions faisant intervenir une précipitation, le risque d'encrassement ou de colmatage des canaux n'est pas négligeable, obligeant parfois à augmenter les dimensions caractéristiques des canaux pour atteindre une taille « aussi petite que nécessaire et non plus aussi petite que possible ». En outre, les pertes de charge dans ces technologies sont la contrepartie des bons transferts et il est donc nécessaire de prendre en considération le rapport du gain de productivité sur la puissance consommée. Les appareils deviennent alors dans certains cas très spécifiques et ne sont plus dédiés qu'à une seule application. Enfin, même si le numbering-up semblait, au début, une solution attractive aux problèmes d'extrapolation à l'échelle industrielle, certaines contraintes sont apparues. La mise en parallèle et/ou en série des microréacteurs pose des problèmes de connectiques entre les microréacteurs et la macrostructure qui l'entoure, de contrôle du procédé et de distribution des fluides. Une des solutions, déjà adoptée à l'échelle industrielle (figure I.4), consiste à développer des procédés hybrides. Ces derniers font intervenir des appareils microstructurés pour les étapes clés du procédé couplés à des technologies plus conventionnelles.

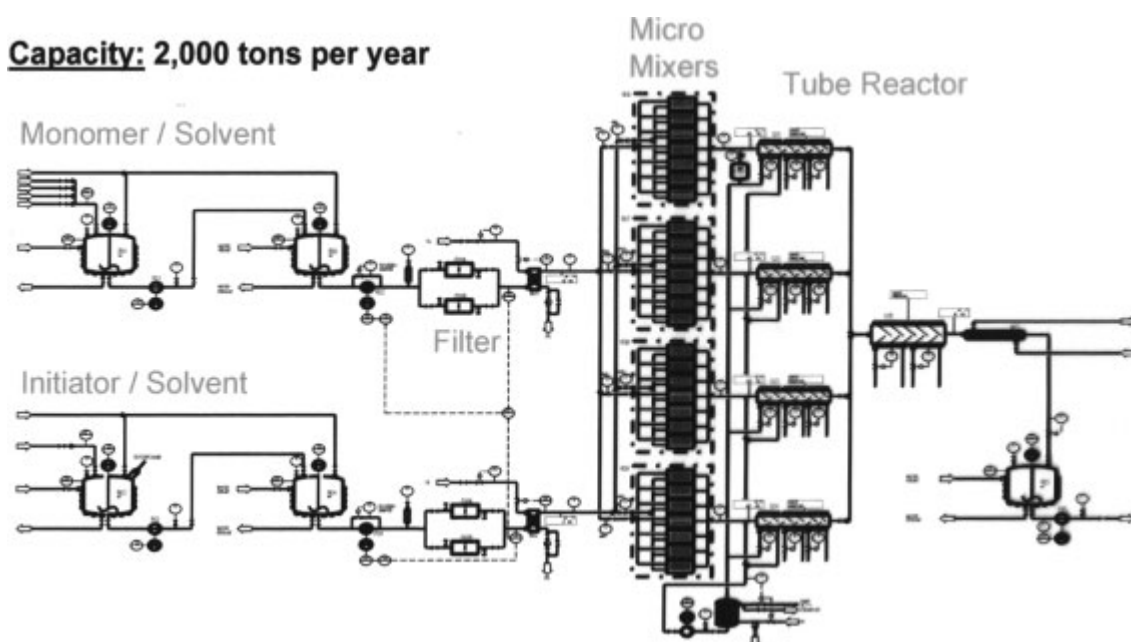


Figure I.4 : Schéma d'un procédé industriel de production de polyacrylate (polymérisation) faisant intervenir 28 micromélangeurs et 4 réacteurs tubulaires traditionnels, Siemens (Francfort, Allemagne).

c. Les mélangeurs statiques

Les mélangeurs statiques sont constitués de plusieurs unités élémentaires, identiques et immobiles, placées dans une conduite, une colonne ou un réacteur. Cette technologie permet de mélanger et d'homogénéiser l'écoulement sans apporter d'énergie extérieure, excepté la puissance de pompage requise pour faire circuler le fluide. Chaque

élément redistribue et homogénéise radialement l'écoulement sans tenir compte de la vitesse de passage. Les produits sont donc parfaitement mélangés et il n'existe plus de gradients de température, de vitesse et de concentrations dans la section. L'efficacité du mélangeur statique dépend de sa géométrie et du nombre d'éléments qui le composent. Ces paramètres sont ajustés selon l'utilisation.

Il existe de nombreuses géométries disponibles (*Thakur et al, 2003*), une trentaine étant actuellement commercialisées (figure I.5). Les applications de cette technologie peuvent être classées en quatre catégories : le mélange de fluides homogènes, la génération d'interfaces entre phases hétérogènes, le transfert de chaleur et le mélange axial (cf. figure I.6).

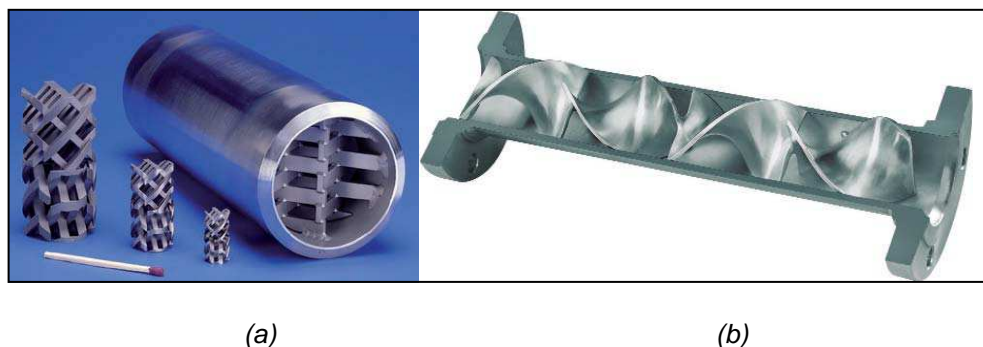


Figure I.5 : deux exemples de mélangeur statique : (a) SMX (Sulzer) ; (b) Kenics (Chemineer).

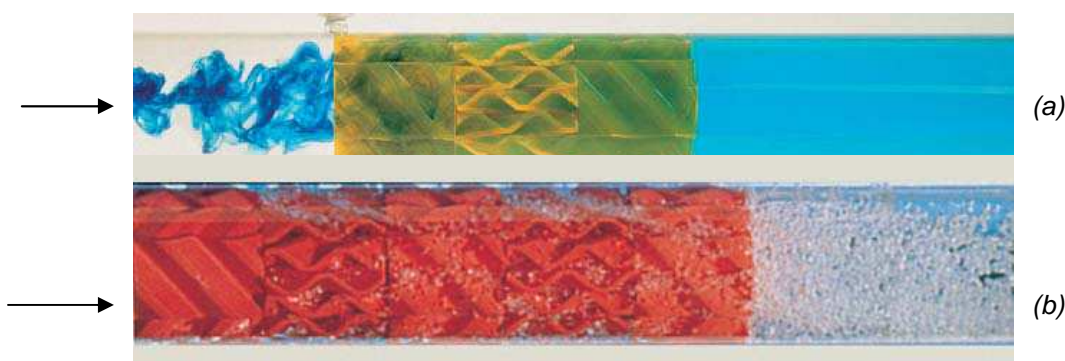


Figure I.6 : Exemples d'homogénéisation radiale de l'écoulement (a) et de dispersion gaz/liquide (b) (Sulzer).

L'efficacité du mélange dans les mélangeurs statiques est intéressante notamment pour la mise en œuvre de synthèses chimiques, lorsque les cinétiques de réaction sont très rapides, i.e. quand le mélange est limitant, et qu'un écoulement piston est requis. Cependant, les conditions opératoires se dégradent lorsque les fluides ont des viscosités très différentes. Dans le cas de phases hétérogènes, l'utilisation de mélangeurs statiques favorise les transferts de matière aussi bien en liquide/liquide qu'en gaz/liquide ou qu'en solide/liquide. Une des applications les plus fréquentes concerne l'émulsification suivie de l'encapsulation par polymérisation (*Theron et al, 2009*).

Les mélangeurs statiques peuvent être également insérés dans les tubes ou dans la calandre des échangeurs de chaleur améliorant encore le transfert de chaleur au détriment des pertes de charge. Mais il est en fait souvent inutile car trop onéreux et trop gourmand en

énergie d'utiliser cette technologie dans les appareils traditionnels. En revanche, lorsque une réaction exothermique entre en jeu, ils permettent d'évacuer rapidement la chaleur libérée par la réaction tout en ayant un écoulement de type piston et de faibles quantités de produits. Les applications industrielles les plus courantes concernent les polymérisations et notamment la fabrication du polystyrène.

Enfin, marginalement, certains mélangeurs statiques peuvent être utilisés pour promouvoir le mélange axial, l'objectif étant d'avoir une distribution de temps de séjour similaire à celle d'un réacteur continu parfaitement agité. Aucune application industrielle n'est connue à ce jour.

Au final, les mélangeurs statiques présentent les avantages des réacteurs continus intensifiés : comportement de l'écoulement de type piston, intensification des transferts de chaleur et de matière, conduite plus sûre, amélioration des sélectivités et des rendements (Brechtelsbauer & Ricard, 2001). Cependant, même si les géométries sont nombreuses et couvrent une large gamme d'applications, la polyvalence d'un mélangeur donné est relativement faible et son utilisation dépendra des pertes de charge acceptables et du facteur d'encrassement des produits, la maintenance dans ces appareils étant compliquée. De la même manière que pour les microréacteurs, une des solutions souvent employée à l'échelle industrielle est de concevoir des unités hybrides dans lesquelles les mélangeurs statiques n'interviennent qu'aux étapes clés (mélange de deux réactifs, dégagement de chaleur en début de réaction,...) comme, par exemple, le procédé Sulzer de fabrication du polystyrène (Thakur et al, 2003).

d. Oscillatory Baffle Reactor (OBR) ou réacteur pulsé à chicane

La figure I.7 représente schématiquement le principe de l'OBR. Un tube, équipé de chicanes, dans lequel circule le fluide réactionnel est emmanché sur un dispositif qui crée des pulsations périodiques au sein de l'écoulement. Les oscillations sont d'intensité variable et se superposent au débit principal. La particularité de cette technologie est le découplage entre le temps de séjour et les performances thermo-hydrauliques de l'appareil. En effet, le premier dépend directement du débit circulant dans le tube alors que le mélange, le comportement hydrodynamique et le transfert de chaleur dépendent de la fréquence des oscillations (Ni et al, 2003).

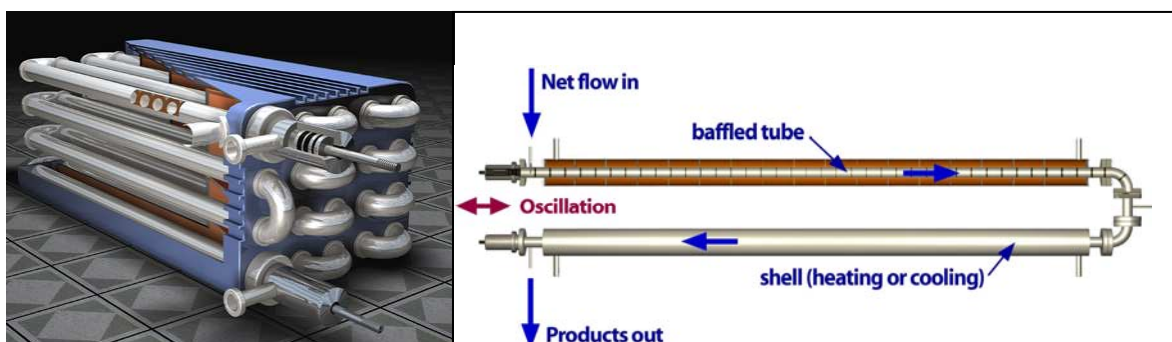


Figure I.7 : Vues schématiques de l'Oscillatory Baffle Reactor

Ainsi, l'OBR permet d'obtenir un écoulement piston en régime laminaire, i.e. en ayant un temps de séjour suffisamment long pour la chimie, de contrôler la taille des gouttes en

dispersion liquide/liquide, d'améliorer les transferts de matière et de chaleur à puissance volumique équivalente par rapport au réacteur discontinu et de réaliser des polymérisations en suspension. La polymérisation du polyacrylamide (*Ni et al, 2001*) a été mise en œuvre dans l'OBR. Les tailles de goutte et de particule sont maîtrisées et reproductibles via l'optimisation des paramètres opératoires, à savoir, le diamètre et l'espacement des chicanes et la fréquence et l'amplitude des oscillations. Enfin, Stonestreet et al. (1999) ont comparé le procédé traditionnel (réacteur discontinu) avec le procédé continu (OBR à l'échelle du laboratoire) dans le cas de l'hydrolyse d'un ester. Le temps de séjour nécessaire a été divisé par 8 et le volume par 100.

Cependant, cette technologie pilote, qui a fait ses preuves pour de nombreuses applications, doit maintenant être extrapolée à l'échelle industrielle. En outre, même si l'OBR est performant en milieu liquide, il présente quelques limitations dans le cas de phases hétérogènes gaz/liquide ou liquide/solide (>55%w.), voire même lorsque les produits sont trop visqueux (1000 cP). En effet, dans ces trois cas, la propagation des ondes oscillatoires est perturbée jusqu'à leur disparition si la seconde phase (gaz ou solide) est majoritaire. Dans le cas de fluides visqueux, cette barrière peut être levée, quand cela est possible en chauffant le milieu réactionnel.

I.1.3 LES ECHANGEURS/REACTEURS COMPACTS

Le transfert de chaleur est une étape clé dans les procédés de synthèse chimique. Maîtrisé, il permet de s'affranchir de certaines contraintes environnementales et de sécurité inhérentes au procédé tout en restant viable économiquement. En combinant l'échange thermique et la réaction au sein d'une seule et même unité, la chaleur dégagée ou absorbée est immédiatement évacuée ou apportée, c'est la particularité des échangeurs/réacteurs continus. Leur technologie est avant tout basée sur celle des échangeurs de chaleur dans lesquels sont mises en jeu des synthèses chimiques exo- ou endothermiques. La condition nécessaire de transfert thermique est évidemment respectée mais elle est loin d'être suffisante. En effet, lors de la mise en œuvre de réactions dans quelque appareil que ce soit, le temps de séjour doit être suffisamment long pour atteindre les conversions souhaitées, le mélange entre réactifs doit être efficace notamment lorsque la cinétique est rapide et l'écoulement doit s'apparenter à un écoulement piston. Ces conditions n'étant pas toujours respectées dans les échangeurs de chaleur classiques, deux voies sont explorées pour y remédier : l'ajout d'inserts (géométries 3D) ou la structuration bidimensionnelle du canal réactionnel. Cette dernière faisant l'objet du second paragraphe de ce chapitre, seules les technologies d'inserts tridimensionnels les plus utilisés sont détaillées ci-dessous. Deux applications mettant en œuvre des échangeurs/réacteurs continus munis d'inserts et effectuées au sein de notre équipe sont ensuite présentées.

Il faut préciser à ce stade que la géométrie des échangeurs/réacteurs est généralement basée sur celle des échangeurs à plaques (*Thonon & Tochon, 2004*). Même s'il est possible d'intensifier les transferts dans un échangeur à tubes et calandre, en plaçant des inserts dans les tubes par exemple, les échangeurs à plaques ont l'avantage d'être plus compacts et l'encrassement est diminué de 10 à 25%, facilitant ainsi la maintenance.

Ce type d'échangeur est constitué de plaques minces ondulées assemblées soit à l'aide de joints, soit par soudage ou par brasage (cf. figure I.8). Dans le cas de l'utilisation de joints,

l'échangeur peut être facilement démonté pour le nettoyage et la maintenance et il est possible d'ajouter ou de retirer des plaques selon les conditions opératoires, rendant ainsi l'appareil assez polyvalent. Les températures et pressions maximales sont de l'ordre de 200°C pour 25 bars. Dans le cas de conditions opératoires plus sévères ou lors de l'utilisation de produits très corrosifs, la technologie brasée ou soudée devient plus intéressante à condition de ne pas travailler avec des fluides trop encrassants. Ces échangeurs sont dits compacts dès lors que leur compacité dépasse les $700 \text{ m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$ (Shah & Mueller, 2002).

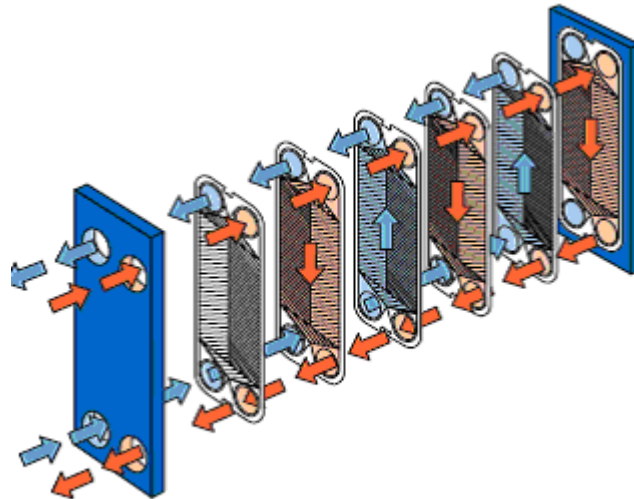


Figure I.8: Vue schématique d'un échangeur à plaques.

Dans le cas des échangeurs/réacteurs, les plaques dans lesquelles circule le fluide réactionnel sont placées en alternance avec les plaques de refroidissement (ou de chauffe). Pour l'intensification, les deux principales possibilités sont soit de remplacer la plaque par des inserts 3D (figure I.9), soit de remplacer les ondulations par un canal structuré dans lequel circule le fluide réactionnel.

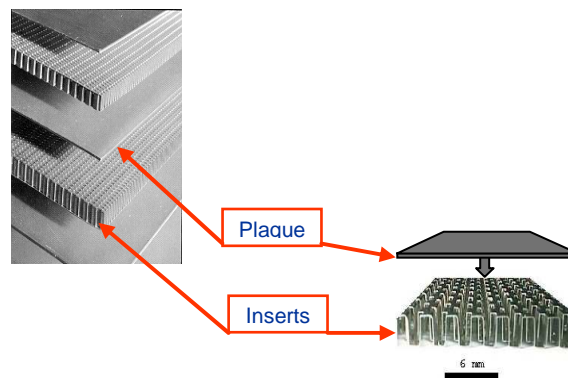


Figure I.9: Eléments constituant un échangeur à plaques avec inserts. Les plaques séparent les fluides qui circulent à travers les inserts.

I.1.3.1 Inserts tridimensionnels

a. Les ailettes

L'intensification du transfert de chaleur dans les échangeurs à plaques et ailettes a fait l'objet de nombreuses études dans la littérature (*Shah & Mueller, 2002 ; Thonon & Tochon, 2004*). Leur utilisation en tant qu'échangeur/réacteur est moins répandue et plus récente. Ainsi, Murata et al. (1996) ont comparé les performances d'un réacteur à lit fixe avec un échangeur/réacteur à tubes et calandre puis à ailettes pour une application type stockage thermochimique et pompe à chaleur. La réaction endothermique réversible de déshydrogénation du cyclohexane dans l'échangeur/réacteur a donc été mise en oeuvre (cf. figure I.10).

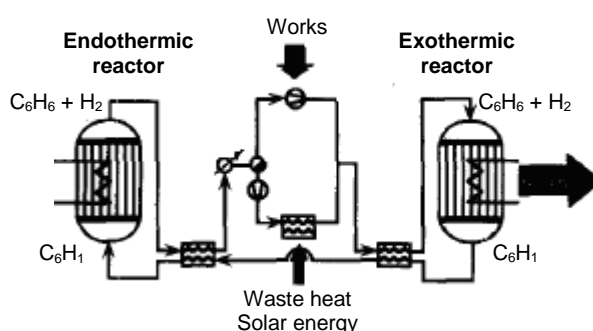


Figure I.10: Pompe à chaleur chimique mettant en jeu la déshydrogénation du cyclohexane (endothermique) et l'hydrogénation du benzène (exothermique) ; (Murata et al, 1996).

Une autre application concerne les piles à combustible. Plusieurs travaux (*Dudfield et al, 2001 ; Pan & Wang, 2005*) ont été menés pour coupler le reformage à la vapeur du méthanol (réaction endothermique) avec la combustion catalytique de l'hydrogène (réaction exothermique) dans le même appareil. Pan & Wang (2005) ont travaillé avec des ailettes perforées (cf. figure I.11) permettant ainsi un gain de volume conséquent et une température de travail parfaitement contrôlée ; ces deux paramètres étant des contraintes importantes dans les piles à combustible.

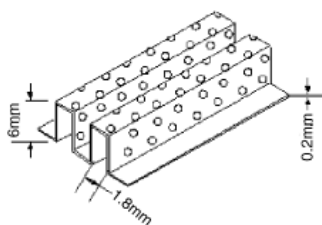


Figure I.11: Ailettes perforées pour le reformage du méthanol (Pan & Wang, 2005).

Le transport et la diffusion des perturbations locales de l'écoulement créées au niveau de chaque ailette permettent de générer de la turbulence dans l'échangeur/réacteur. Cette caractéristique permet d'intensifier les transferts de chaleur mais ce n'est pas suffisant pour mettre en oeuvre une réaction. Ainsi, Ferrouillat et al. (2006a), ont étudié les propriétés de mélange des échangeurs/réacteurs à ailettes à pas décalés (cf. figure I.12) et les ont comparées avec celles d'un canal vide ordinaire.

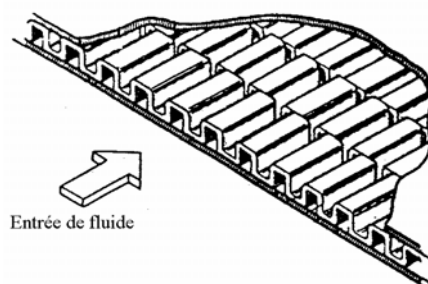


Figure I.12: Vue schématique des ailettes à pas décalés

Lorsque les cinétiques de réaction sont très rapides voire instantanées, la qualité du micromélange est importante puisque c'est le facteur limitant du processus de transformation chimique. Lorsque le temps de séjour est fixé, Ferrouillat et al. (2006a) ont montré que les ailettes permettaient de réduire le temps de micromélange. Cependant, elles requièrent une puissance de pompage plus importante que le canal vide et il faudra donc faire un compromis entre niveau de micromélange requis, compacité de l'appareil et pertes de charge acceptables lors de la conception de l'échangeur/réacteur.

b. Les mousses métalliques

Les mousses métalliques (figure I.13) ont beaucoup été étudiées en tant qu'échangeur de chaleur (Boomsma et al, 2003 ; Pavel & Mohamad, 2004) ou en tant que support catalytique dans le cas de réactions endo- ou exothermiques, le plus souvent pour le reformage à la vapeur du méthanol (Giani et al, 2008 ; Chen et al, 2008, Ismagilov et al, 2001) ou pour des hydrogénations (Dhiman et al, 2005).

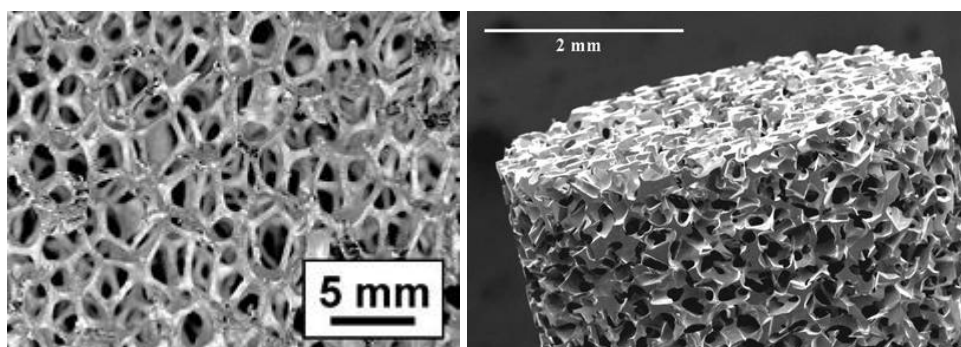


Figure I.13: Photographies de mousses métalliques.

Elles présentent de nombreux avantages par rapport aux catalyseurs classiques (Twigg & Richardson, 2007) : les pertes de charge sont moins élevées que dans les lits fixes traditionnels, les surfaces spécifiques sont plus grandes et leur géométrie isotrope permet une homogénéisation radiale de l'écoulement et notamment des températures.

Cette dernière caractéristique est intéressante pour mettre en œuvre des réactions car le comportement piston de l'écoulement en dépend. Il en est de même pour l'efficacité des transferts de chaleur et de matière (Abbana Benani, 2008).

En vue donc d'une application en tant qu'échangeur/réacteur, Ferrouillat et al. (2006a) ont étudié le micromélange dans les mousses métalliques. Pour un temps de séjour donné, elles génèrent le temps de micromélange le plus faible en comparaison des ailettes à pas décalés et du tube vide. Cette intensification du mélange et le gain en compacité qu'elles représentent se font cependant au détriment des pertes de charge.

Ainsi malgré leur grande compétitivité en tant qu'échangeur/réacteurs catalytiques, les fortes puissances de pompage requises ainsi que la possibilité d'encrassement des mousses métalliques semblent défavoriser cette technologie par rapport à des inserts plus traditionnels (Twigg & Richardson, 2007).

c. Mélangeurs de type HEV

Ce type d'insert est fabriqué en pliant ou en emboutissant la paroi d'une plaque ou d'un canal. Il s'agit d'ailerons, rectangulaires ou triangulaires, placés au sein de l'écoulement (cf. figure I.14).

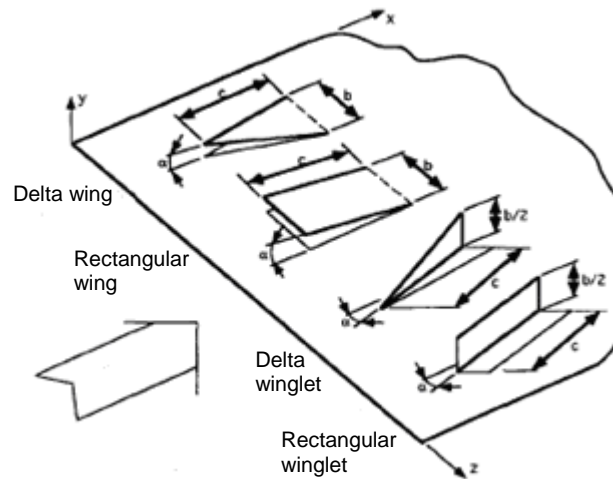


Figure I.14: Générateurs de vortex les plus communs. Ils peuvent être associés par paire (Jacobi & Shah, 1995).

Lorsque l'écoulement rencontre ces structures, des vortex longitudinaux sont générés perpendiculairement à la direction de l'écoulement principal. Ils permettent une meilleure homogénéisation de l'écoulement augmentant ainsi les capacités de transfert thermique de l'appareil et abaissant la transition entre régime laminaire et régime turbulent (Tiggelbeck et al, 1994 ; Biswas et al, 1994 ; Jacobi & Shah, 1995 ; Fiebig, 1998). Ainsi, à même débit, pour une perte de charge et une quantité de chaleur données, la surface nécessaire pour transférer totalement la chaleur sera moins importante dans le cas des mélangeurs de type HEV que dans les géométries à ailettes (ailettes à pas décalés, ailettes perforées,...). Cependant, Jacobi & Shah (1995) ont relevé un certain nombre de lacunes concernant l'étude de cette technologie. Peu de données expérimentales existent quant à l'utilisation de ces inserts dans un échangeur global, la plupart des études ayant été réalisées sur seulement deux ou trois rangées d'ailerons. Il est donc difficile d'établir une comparaison poussée avec les échangeurs compacts déjà industrialisés. Enfin, leur comportement vis-à-vis de l'encrassement est encore peu connu.

Plus récemment et dans le but d'utiliser cette technologie dans des échangeurs/réacteurs, trois études ont été menées pour caractériser les propriétés de mélange d'un écoulement homogène (Ferrouillat et al, 2006c ; Mokrani et al, 2009) et la dispersion d'un mélange huile/eau circulant dans un tube muni de mélangeurs de type HEV (Lemenand et al, 2005). Les résultats expérimentaux et numériques ont confirmé les études antérieures sur le transfert de chaleur et ont montré que les mélangeurs de type HEV amélioraient le transfert de matière. Les écoulements secondaires générés par les ailerons favorisent la distribution radiale de la quantité de mouvement et augmentent l'intensité de la turbulence de 5 à 17% après une certaine longueur d'établissement correspondant à trois rangées d'ailerons. Ces résultats sont encourageants pour la mise en œuvre de réactions chimiques. Cependant, des caractérisations supplémentaires sont nécessaires, notamment pour la distribution du temps de séjour car Mokrani et al. (2009) ont observé que les profils radiaux de dissipation énergétique n'étaient pas parfaitement homogènes.

Une des applications intéressantes de cette technologie concerne la dispersion liquide/liquide. La distribution de taille pour un système huile/eau peut être prédite et la comparaison énergétique avec des mélangeurs statiques classiques est intéressante. Pour une aire interfaciale de $1000 \text{ m}^2 \cdot \text{m}^{-3}$, la consommation énergétique des ailerons est divisée par 1000 (cf. figure I.15).

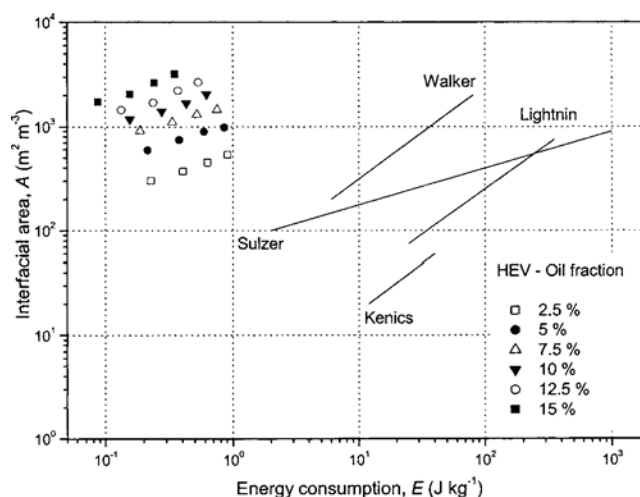


Figure I.15: Comparaison du coût énergétique entre générateurs de vortex et mélangeurs statiques (Lemenand et al., 2005).

Afin d'envisager une utilisation à plus grande échelle de cette technologie, d'autres systèmes diphasiques doivent être caractérisés, notamment lorsque des solides interviennent afin de tester la résistance à l'encrassement des ailerons. De plus, il faut s'assurer que l'homogénéisation radiale de la dispersion est effective pour ne pas avoir de zones d'accumulations des réactifs en cas de synthèse chimique.

I.1.3.2 Applications

L'intensification potentielle que peuvent apporter les inserts 3D à un procédé global n'a souvent été caractérisée qu'à l'échelle de l'élément ou du canal comme c'est le cas pour les géométries précédentes. Pour compléter ces travaux, deux autres technologies d'inserts ont été caractérisées et testées au sein de notre équipe de recherche à l'échelle d'une unité

complète. Elles concernent les échangeurs/réacteurs « Open Plate Reactor » et « ShimTec[®] reactor ».

a. Le réacteur OPR (Open Plate Reactor)

L'appareil, conçu par Alfa Laval et caractérisé au laboratoire de génie chimique, comporte trois blocs, chacun constitué par une plaque réactionnelle encadrée de deux plaques de refroidissement. Selon leur arrangement et leur nombre, plusieurs configurations des écoulements des fluides procédé et utilité peuvent être envisagées. Pour cette étude, les 1^{er} et 3^{ème} blocs sont à co-courant, le 2^{ème} bloc étant à contre-courant (Prat et al, 2005). La plaque réactionnelle est garnie d'inserts en PEEK (Polyétheréthercétone ; cf. figure I.16). Leur nombre et leur disposition peuvent être ajustés en fonction du temps de séjour requis et de la réaction mise en œuvre.

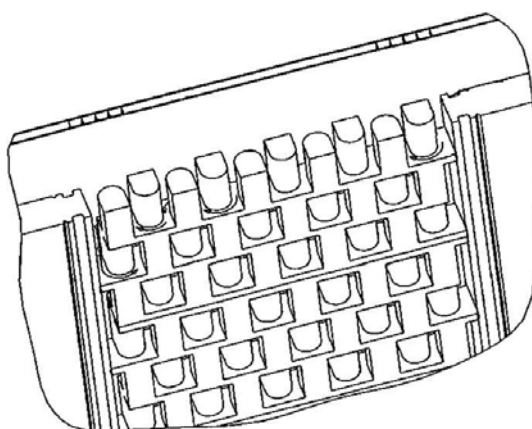


Figure I.16: Schéma des inserts de la plaque réactionnelle.

La distribution du temps de séjour souligne le caractère piston de l'écoulement confirmant ainsi les travaux de Bouaifi et al. (2004). En effet, ces auteurs ont montré que chaque élément en série permettait d'assurer un mélange efficace en modifiant constamment la direction de l'écoulement, favorisant ainsi les taux de cisaillement et de dissipation de l'énergie turbulente. De plus, la caractérisation thermique a permis d'estimer un coefficient global de transfert de chaleur compris entre 1900 et 2300 $W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$. L'OPR se situe donc à mi-chemin entre un échangeur à plaque classique ($U=5000 W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$) et un réacteur tubulaire ($U=500 W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$).

Le couplage entre bonnes performances thermiques et efficacité du mélange permet, de manière sûre, de mettre en œuvre une réaction exothermique, instantanée et irréversible, telle que, par exemple, l'oxydation du thiosulfate de sodium par le peroxyde d'hydrogène. Pour conduire cette synthèse en mode discontinu, les réactifs doivent être dilués ou coulés très lentement afin de ne pas provoquer d'emballement thermique. Dans l'OPR, au contraire, les réactifs ont été concentrés afin d'obtenir une conversion finale acceptable par rapport au faible temps de séjour dont nous disposons dans l'appareil limité pour cette étude à 3 plaques en série.

Ces résultats expérimentaux ont été utilisés pour développer un outil de simulation afin de reproduire et de prédire le comportement de l'OPR (Elgue et al, 2004 ; Elgue et al, 2006). Ce modèle intègre les données hydrodynamiques, thermiques et les aspects réactionnels

caractérisés expérimentalement. Ainsi selon les applications requises, il permet de réaliser une étude de faisabilité en optimisant la configuration de l'appareil, les positions d'injection des réactifs,... ; de prédire le contrôle du procédé en estimant son comportement et ses conditions opératoires optimales et de mettre en œuvre des analyses dynamiques notamment dans le cadre des études de sécurité. Ainsi, Benaïssa et al. (2008) ont simulé des arrêts de fonctionnement des lignes de refroidissement et d'alimentation des réactifs et étudié le comportement de l'OPR en conséquence, mettant en évidence son caractère intrinsèquement plus sûr par rapport au réacteur discontinu.

Ces dispositifs de prédiction et de contrôle sont nécessaires pour développer ce type d'installation à l'échelle industrielle. Haugwitz et al. (2007) ont également développé un outil de contrôle pour optimiser la conversion tout en gérant les contraintes externes du procédé.

b. Le réacteur ShimTec®

Cet échangeur/réacteur est conçu et construit par Chart Industries. Les plaques réactionnelles sont gravées par procédé photochimique puis empilées de façon à former un chemin réactionnel en trois dimensions (cf. figure I.17). Elles sont ensuite soudées par diffusion. Chaque plaque réactionnelle est prise en sandwich entre deux plaques de refroidissement.

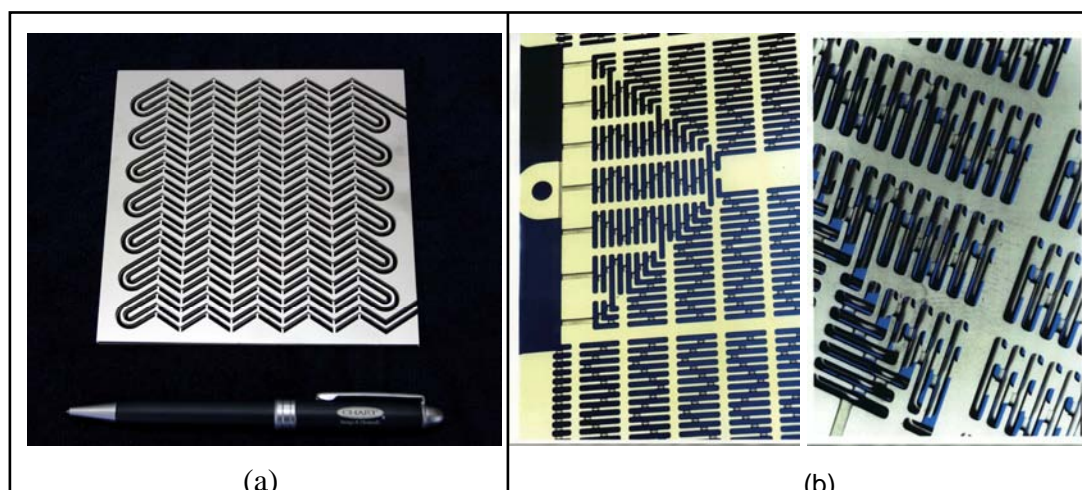


Figure I.17: Plaque réactionnelle du réacteur ShimTec ; a) Modèle KTS10540 (Anxionnaz et al, 2009a); b) Marbond™ (Phillips & Symonds, 1999).

Phillips & Symonds (1999) ont comparé les performances de mélange du Marbond™ avec celles d'un échangeur/réacteur à plaques et ailettes classique. La réaction du 1- et 2-naphtol avec l'acide sulfanilique diazoté donne quatre produits colorés, chacun étant formé à des vitesses différentes. Ainsi en mesurant la quantité de chaque produit dans les deux appareils, il est possible de comparer la qualité du mélange. Les auteurs ont ainsi noté que 30% de sous-produits en moins étaient fabriqués dans le Marbond™. La seconde réaction de caractérisation est une réaction d'hydrolyse (Schéma réactionnel de Walker). Elle comporte deux étapes, la première est très rapide et légèrement exothermique, l'un des réactifs catalyse la seconde étape moins rapide, considérée comme indésirable. Ainsi, moins la seconde réaction forme de produits, meilleur est le mélange. Le Marbond™ a donc été testé en mode isotherme et en mode adiabatique. Les auteurs ont montré que l'évacuation

de la chaleur de réaction (mode isotherme) permettait de réduire la quantité de produits secondaires (étape 2) formés. Grâce au développement d'un outil numérique, ils prédisent ainsi une nette réduction des produits indésirables dans le cas de réactions fortement exothermiques.

Pour compléter ces travaux, la caractérisation complète des performances thermo-hydrauliques du ShimTec a été réalisée (*Anxionnaz et al, 2009a*). L'écoulement dans l'échangeur/réacteur peut être assimilé à un écoulement de type piston et une corrélation reliant les pertes de charge au nombre de Reynolds a été établie. La caractérisation thermique a permis de souligner l'efficacité thermique de l'appareil, supérieure à 95% pour toutes les expériences. Le coefficient global de transfert de chaleur est du même ordre de grandeur que celui de l'OPR, soit $2000 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$.

Ces étapes préliminaires étant validées, la réaction exothermique d'oxydation du thiosulfate de sodium par le peroxyde d'hydrogène a pu être mise en œuvre ($\Delta H_r = -586,2 \text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ de $\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3$). La conversion est calculée par bilan thermique sur le réacteur ainsi que dans un vase calorifugé placé en sortie de réacteur. Le fluide secondaire est chauffé à 47°C afin tout d'abord d'initier la réaction, d'accélérer ensuite sa cinétique puis de contrôler la température du milieu réactionnel quand la chaleur de réaction devient trop importante. Des conversions de l'ordre de 70% sont obtenues. Elles ne sont pas complètes du fait du très faible temps de séjour dans l'appareil (<15 secondes) mais celui-ci peut être facilement rallongé par l'ajout de plaques supplémentaires.

La comparaison avec la mise en œuvre de cette synthèse exothermique en réacteur discontinu est intéressante. La chaleur dégagée pendant la réaction par unité de volume dans le ShimTec vaut $20\cdot 10^3 \text{ kW}\cdot\text{m}^{-3}$. Le coefficient global de transfert de chaleur dans un réacteur discontinu à double enveloppe est estimé au maximum à $500 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$. Nous avons donc évalué la chaleur maximale qui pouvait être évacuée par la double enveloppe pour un gradient de température de 45°C :

$$Q_{\max} = U \cdot A \cdot \Delta T \quad (I-2)$$

Les valeurs numériques sont récapitulées dans le tableau I.2.

Volume (m³)	1·10 ⁻³	1·10 ⁻²	0,1	1
Diamètre (m)	0,08	0,2	0,4	0,9
hauteur (m)	0,2	0,3	0,8	1,4
Aire d'échange (m²)	0,055	0,22	1,13	4,6
Q_{max}/V (kW·m⁻³)	1200	500	250	100
t_c (s)	230	560	1120	2800

Tableau I.2: Dimensions caractéristiques et chaleur maximale échangée pour un réacteur discontinu à double enveloppe, temps de coulée, t_c dans le cas de la conduite en mode semi-continu.

Il apparaît clairement à la lecture de l'avant-dernière ligne (Q_{\max}/V) que les capacités d'évacuation de la chaleur du réacteur discontinu à double enveloppe ne sont pas suffisantes pour mettre en œuvre la réaction d'oxydation dans les mêmes conditions opératoires que dans le ShimTec. Dans ces conditions, deux solutions s'offrent alors à nous : il faut soit diluer les réactifs, soit opérer en mode semi-continu, i.e. couler lentement un des deux réactifs dans le réacteur. Dans ce cas, le débit de coulée nécessaire pour qu'à

chaque instant la chaleur dégagée par la réaction ne soit pas supérieure aux capacités d'évacuation de la double enveloppe peut être calculé :

$$F_{\max} = \frac{Q_{\max}}{\Delta H_r} \quad (I-3)$$

$$t_c = \frac{m_{\text{thio}}}{M_{\text{thio}} \cdot F_{\max}} \quad (I-4)$$

Cette estimation étant faite, on constate dans le tableau I.2 que le temps de coulée minimum varie donc de 230 à 2800 secondes selon le volume du réacteur, afin d'opérer en sécurité. Cependant, ce temps opératoire reste toujours nettement supérieur au temps de séjour du ShimTec (15 secondes).

Les caractérisations de l'OPR et du ShimTec ont confirmé les tendances prédites par les études élémentaires réalisées sur différentes technologies d'inserts tridimensionnels. En intensifiant les transferts thermiques et massiques, les températures opératoires sont mieux contrôlées permettant d'améliorer les sélectivités (*Phillips & Symonds, 1999*), de travailler de manière sûre (*Benaïssa et al, 2008 ; Elgue et al, 2004*) et de modifier les cinétiques afin de compenser la diminution du temps de séjour inévitable en mode continu (*Anxionnaz et al, 2009a*).

En revanche, peu ou pas de littérature n'est disponible concernant les écoulements diphasiques liquide/liquide ou liquide/solide et c'est un domaine d'applications qui ne peut pas être négligé. Ainsi, on peut se questionner sur le comportement des inserts tridimensionnels vis-à-vis de l'encrassement et des pertes de charge ainsi que sur leur maintenance. En outre, leurs modes de fabrication n'étant pas courants, les coûts de fabrication peuvent être élevés. A l'heure actuelle et dans le contexte d'innovation et de transfert vers l'industrie des procédés continus, ce paramètre n'est évidemment pas à négliger.

La voie des inserts tridimensionnels est néanmoins intéressante et nécessite de plus amples développements, notamment dans le champ de ses applications. Une autre manière envisageable pour intensifier les transferts dans les échangeurs à plaques consiste à structurer en deux dimensions le chemin réactionnel. Cette technologie, plus facile à mettre en œuvre, fait l'objet du paragraphe suivant.

I.2 STRUCTURATION BIDIMENSIONNELLE D'UN CANAL ONDULE

Nous rappelons ici que parmi les nombreux challenges posés par le passage au continu, deux défis sont particulièrement importants à relever :

- Comment combiner écoulement *piston* avec *temps de séjour* suffisant à la chimie ?
- Comment combiner régime *laminaire* (afin d'augmenter le temps de séjour) et *intensification des transferts* thermiques et massiques ?

La solution commune est de générer de la turbulence ou du chaos, nécessaire à l'intensification des transferts, tout en travaillant avec un écoulement en général caractérisé par un régime laminaire afin de disposer d'un temps de séjour suffisant. Une des voies

envisageable pour y arriver est de structurer en 2D un canal ondulé. Ce paragraphe rappelle tout d'abord les corrélations habituelles en conduite rectiligne puis le phénomène de recirculation secondaire est abordé.

I.2.1 ECOULEMENTS DANS LES CONDUITES RECTILIGNES

Ce paragraphe ne se veut pas exhaustif. Il permet simplement de resituer les équations de base qui seront utilisées dans la suite de ce manuscrit. Quelques ouvrages de mécanique des fluides sont indiqués dans les références bibliographiques (*Midoux, 1993 ; Perry, 1997 ; Couderc et al, 2008*). Les équations présentées par la suite sont toutes valides dans le cas de fluides monophasiques, newtoniens, incompressibles et en régime établi.

I.2.1.1 Ecoulement laminaire

Même si les écoulements laminaires présentent peu d'intérêt en termes d'intensification des transferts thermiques et massiques, ils sont souvent rencontrés lorsque les fluides sont peu denses, visqueux ou que le diamètre du canal est faible. Ainsi l'écoulement est dit laminaire lorsque les forces d'inertie sont faibles devant les forces de viscosité, i.e. lorsque le nombre de Reynolds, Re , est bas ($Re \leq 2100$) :

$$Re = \frac{\rho \cdot v \cdot d_h}{\mu} \quad (I-5)$$

μ et ρ sont respectivement la viscosité dynamique et la masse volumique du fluide ; d_h , le diamètre hydraulique du canal et v , la vitesse débitante. Dans le cas d'une conduite rectangulaire, le diamètre hydraulique est défini par la relation suivante :

$$d_h = \frac{4 \cdot S}{P_m} = 2 \cdot \frac{a \cdot b}{a + b} \quad (I-6)$$

a et b étant respectivement la hauteur et la largeur du canal. Lorsque la section de passage est carrée ($a=b$) alors $d_h=a$.

a. Pertes de charge

A partir du bilan de quantité de mouvement et des équations de Navier-Stokes, il est possible d'établir les profils de pression et de vitesse au sein d'une conduite de section circulaire. Le profil de pression est linéaire en fonction de la coordonnée axiale, z et s'écrit :

$$P = \frac{P_L - P_0}{L} \cdot z + P_0 \quad (I-7)$$

P_0 et P_L sont les pressions motrices à l'entrée et à la sortie de la conduite, L correspond à la longueur de conduite.

En régime laminaire, chaque particule de fluide se déplace à vitesse constante parallèle à l'axe du tube selon une trajectoire rectiligne. Avec la condition d'adhérence à la paroi (vitesse nulle à la paroi), le profil de vitesse axial est parabolique (cf. figure I.18) :

$$v_z = \frac{P_0 - P_L}{4 \cdot \mu \cdot L} \cdot R^2 \left(1 - \left(\frac{r}{R} \right)^2 \right) \quad (I-8)$$

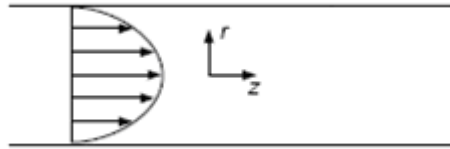


Figure I.18 : Profil parabolique de la vitesse en écoulement laminaire.

On peut donc en déduire la relation entre les pertes de charge et le débit, ce dernier étant calculé en intégrant l'expression de la vitesse axiale sur une section droite du tube. Il vaut donc :

$$Q = \frac{P_0 - P_L}{8 \cdot \mu \cdot L} \cdot \pi \cdot R^4 \quad (I-9)$$

Cette relation est connue sous le nom de loi de Hagen-Poiseuille. A partir de là, il est possible de calculer le facteur de friction de Fanning, f , défini comme étant égal au rapport de la contrainte de frottement à la paroi, τ_p , sur l'énergie cinétique de l'écoulement :

$$\tau_p = -\mu \cdot \left. \frac{dv_z}{dr} \right|_R = \frac{P_0 - P_L}{2L} R \quad (I-10)$$

Et donc,

$$f = \frac{\tau_p}{\frac{1}{2} \rho \cdot v^2} \quad (I-11)$$

En introduisant finalement le nombre de Reynolds et le facteur de friction de Fanning, f dans la relation (I-9), on obtient :

$$\boxed{f = \frac{16}{\text{Re}}} \quad (I-12)$$

Et

$$\Delta P = 4f \frac{L}{d_h} \cdot \frac{1}{2} \rho \cdot v^2 \quad (I-13)$$

Cette loi, vérifiée expérimentalement, est vraie pour les nombres de Reynolds inférieurs à 2100 dans une conduite de section circulaire et montre qu'en régime laminaire les pertes de charge ne dépendent pas de la rugosité de la paroi.

Dans le cas de canaux rectangulaires, on introduit un coefficient correcteur de non-circularité, k_r , qui vaut :

$$k_r = \frac{\frac{3}{2}}{\left[\left(1 - 0,351 \cdot \frac{a}{2} \right) \cdot \left(1 + \frac{a}{b} \right) \right]^2} \quad (I-14)$$

a et b étant respectivement la hauteur et la largeur du canal.

b. Transfert thermique

A partir de l'équation de la chaleur, il est possible, en régime laminaire et sous certaines hypothèses d'établir le profil de température au sein d'un écoulement dans un canal de section circulaire :

$$\frac{\partial T}{\partial z} = \frac{\lambda}{\rho \cdot C_p \cdot v_z} \cdot \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial T}{\partial r} \right) \quad (I-15)$$

Il existe, dans certaines conditions (notamment aux limites), une solution analytique de cette équation aux dérivées partielles, que l'on peut aussi traiter par voie numérique dans le cas plus général. En supposant un profil de température établi, i.e. en ne prenant en compte que la portion de tube suffisamment éloignée de l'entrée, et sous l'hypothèse d'une température de paroi constante, on obtient assez facilement l'expression du nombre de Nusselt, Nu :

$$Nu = \frac{h \cdot d_h}{\lambda} = 3,66 \quad (I-16)$$

Avec h, le coefficient de transfert de chaleur local et λ , la conductivité thermique. Dans le cas de conduites rectangulaires, cette valeur est corrigée et dépend du facteur de forme comme l'indique le tableau I.3 :

b/a	Nu
1	2,98
2	3,39
4	4,44
∞	7,54

Tableau I.3 : Valeurs limites du Nusselt dans le cas de profils de vitesses et de température établis et pour une température de paroi uniforme sur les quatre faces.

Lorsque les tubes sont courts, $L/d_h < 0,1 \cdot Re \cdot Pr$, on utilise le plus souvent la corrélation de Sieder & Tate pour évaluer le nombre de Nusselt :

$$Nu = 1,86 \cdot \left(Re \cdot Pr \cdot \frac{d_h}{L} \right)^{0,33} \cdot \left(\frac{\mu}{\mu_p} \right)^{0,14} \quad (I-17)$$

μ et μ_p sont respectivement les viscosités à la température moyenne du fluide et à la température de la paroi en contact avec le fluide ; Pr est le nombre de Prandtl et L, la longueur du tube.

I.2.1.2 Ecoulement turbulent

Si à faible nombre de Reynolds, les éléments de fluide s'écoulent parallèlement les uns aux autres dans un mouvement purement axial, ce n'est plus le cas lorsque l'on augmente les débits. Ainsi après un régime transitionnel ($2100 < Re < 10^4$), l'écoulement devient turbulent : les propriétés du fluide et les variables caractéristiques fluctuent aléatoirement dans le temps et dans l'espace (cf. figure I.19).

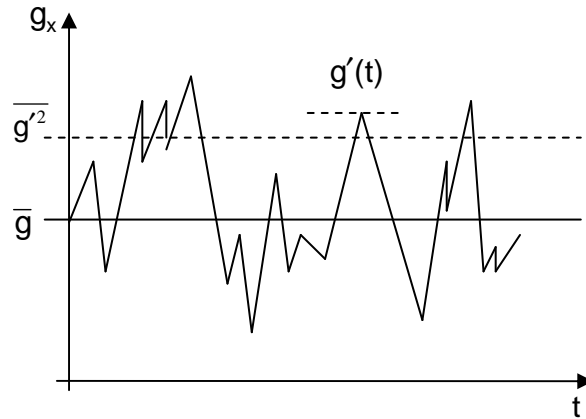


Figure 1.19 : Signal fluctuant d'une grandeur, g , en régime turbulent.

Les propriétés de l'écoulement sont alors représentées par leur valeur moyenne sur le temps :

$$\bar{g} = \frac{1}{t_0} \int_t^{t+t_0} g(x, y, z, t) \cdot dt \quad (I-18)$$

L'amplitude des fluctuations autour de cette valeur moyenne, ou moyenne RMS (Root Mean Square) est alors définie par :

$$\sqrt{\overline{g'^2}} = \sqrt{\overline{(g - \bar{g})^2}} \quad (I-19)$$

Ces fluctuations turbulentes résultent d'instabilités de l'écoulement et consistent en des structures aléatoires de longueur d'onde et de fréquence variable. On peut définir la densité spectrale en fluctuations de g , $P(f)$ telle que :

$$\int_0^{\infty} P(f) \cdot df = \overline{g'^2} \quad (I-20)$$

La figure 1.20 représente le spectre de fluctuations turbulentes qui peut toujours être divisé en trois zones. Les pentes aux moyennes et hautes fréquences sont identiques quelles que soient la géométrie du système et les conditions d'écoulement. Ainsi, il semblerait que la turbulence possède une certaine organisation malgré sa structure aléatoire.

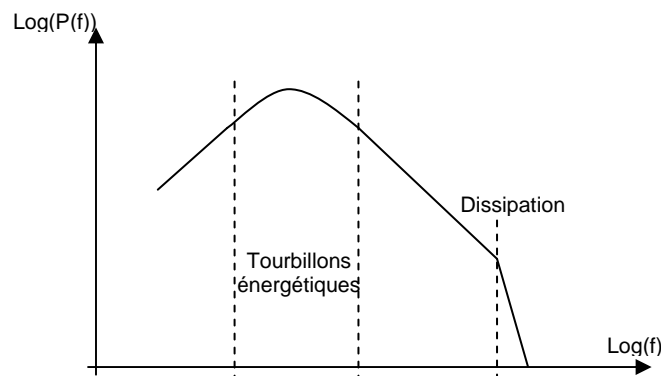


Figure 1.20 : Allure du spectre de fluctuations turbulentes de la grandeur g .

L'échelle qui caractérise la taille moyenne des tourbillons énergétiques est appelée macroéchelle de Taylor. Ces tourbillons, qui extraient l'énergie cinétique du mouvement

moyen, s'étirent et génèrent toute une série de tourbillons de plus en plus petits. L'énergie cinétique est transmise vers ces derniers pour être finalement transformée en chaleur par dissipation visqueuse, ce phénomène se produit aux échelles de Kolmogorov.

Les principes de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et les bilans d'énergie ou de matière sont valables quelque soit le régime d'écoulement. Cependant, en régime turbulent, les mouvements instantanés sont instationnaires et tridimensionnels. Il en découle une grande complexité quant à la résolution des équations et il est donc nécessaire, sauf dans le cas de géométries simples, d'établir les équations moyennées dans le temps. Même si les systèmes d'équations s'en trouvent simplifiés, il existe toujours des termes turbulents qui les maintiennent ouverts (plus d'inconnues que d'équations) et les efforts de recherche se concentrent donc sur l'établissement de lois de fermeture via la modélisation des termes de transport turbulent et de dissipation visqueuse turbulente.

Ainsi, la plupart des modélisations ont en commun le fait de considérer que les fluctuations de vitesse au sein d'un écoulement turbulent transportent d'un point à un autre une densité de flux nette de quantité de mouvement, de chaleur ou d'une espèce d'autant plus forte que les variations spatiales de vitesse moyenne, de température moyenne ou de concentration moyenne sont fortes. En d'autres termes, elles considèrent que les termes de transport turbulent sont proportionnels aux gradients des intensités moyennes correspondantes. Ainsi dans le cas d'un écoulement unidirectionnel parallèle à une paroi située en $y=0$, on peut retenir la relation suivante pour la contrainte de frottement à la paroi :

$$\bar{\tau}_{yxT} = -\mu_T \cdot \frac{d\bar{v}_x}{dy} \quad (I-21)$$

μ_T , homogène à une viscosité dynamique porte le nom de viscosité turbulente. La diffusivité turbulente est alors définie comme :

$$\nu_T = \frac{\mu_T}{\rho} \quad (I-22)$$

Contrairement à la diffusivité moléculaire, la diffusivité turbulente n'est pas une propriété intrinsèque du fluide, elle varie avec la position de l'écoulement et d'un système à un autre. Pour modéliser cette grandeur, Prandtl et Kolmogorov ont suggéré de l'écrire comme étant le produit de la racine carrée de l'énergie cinétique turbulente, k , par une longueur caractéristique, l :

$$\nu_T = l \cdot \sqrt{k} \quad \text{avec } k = \frac{1}{2} \left(\overline{v_x'^2} + \overline{v_y'^2} + \overline{v_z'^2} \right) \quad (I-23)$$

Or l'énergie cinétique et la dissipation visqueuse peuvent être reliées par :

$$\varepsilon = C_\mu \cdot \frac{k^{3/2}}{l} \quad (I-24)$$

ainsi la diffusivité turbulente devient :

$$\nu_T = C_\mu \cdot \frac{k^2}{\varepsilon} \quad (I-25)$$

La diffusion turbulente peut caractériser le méso-mélange ou mélange à l'échelle inertielle dans le spectre de l'énergie tandis que la dissipation turbulente peut caractériser le micro-mélange.

Si l'on revient maintenant aux échelles caractéristiques définies sur la figure I.20, on montre à partir de l'équation (I-25) que la macroéchelle de Taylor a pour dimension caractéristique, Λ :

$$\Lambda \approx \frac{k^{3/2}}{\varepsilon} \quad (I-26)$$

Ces tourbillons s'étirent et créent des tourbillons de plus petites tailles jusqu'à atteindre les échelles de Kolmogorov en dessous desquelles l'énergie cinétique est transformée en chaleur sous forme de dissipation visqueuse :

$$l_k \approx \left(\frac{v^3}{\varepsilon} \right)^{1/4} \quad (I-27)$$

L'échelle de temps associée s'écrit donc :

$$t_k \approx \sqrt{\frac{v}{\varepsilon}} \quad (I-28)$$

Cette échelle revêt toute son importance dans le cas des transformations chimiques. En effet, le mélange des réactifs est une étape primordiale et plus la cinétique chimique est rapide, plus il est nécessaire d'avoir un mélange à très petite échelle (ou micromélange) le plus efficace possible. Un des enjeux de la structuration des échangeurs/réacteurs est de promouvoir cette turbulence afin de mettre en contact le plus rapidement possible les phases réactives entre elles.

a. Pertes de charge

Les profils de vitesse et de pression sont plus complexes qu'en régime laminaire, nous n'indiquerons ici que les corrélations empiriques. Ainsi dans le cas de nombre de Reynolds supérieurs à 10^4 , on utilise la formule de Blasius pour calculer le coefficient de Darcy, Λ :

$$\Lambda = \frac{0,3164}{\text{Re}^{1/4}} \text{ avec } \Lambda = 4f \quad (I-29)$$

Dans le cas de conduites rugueuses, on peut utiliser la formule de Colebrook :

$$\frac{1}{\sqrt{\Lambda}} = -2 \cdot \log \left[\frac{2,51}{\text{Re} \cdot \sqrt{\Lambda}} + 0,270 \cdot \varepsilon \right] \quad (I-30)$$

ε étant ici la rugosité relative à la paroi. L'ensemble des valeurs de Λ est représenté par le diagramme de Colebrook (figure I.21). Dans le cas des conduites rectangulaires, les corrélations sont inchangées en régime turbulent.

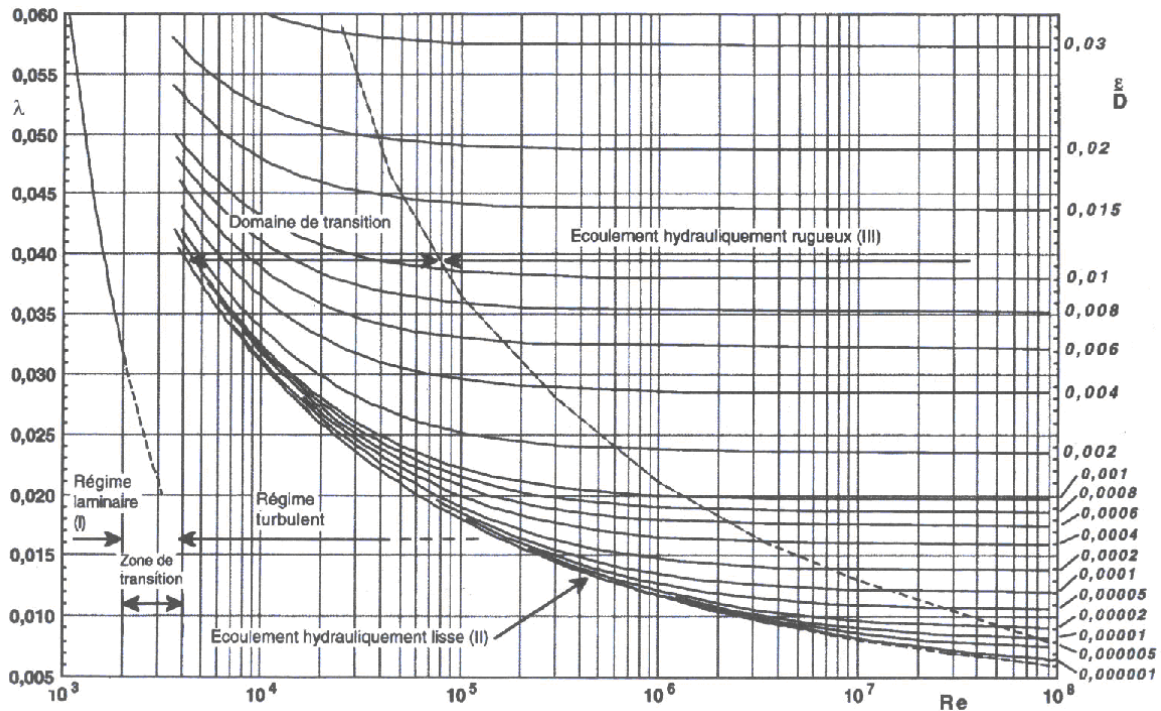


Figure I.21 : Diagramme de Colebrook.

b. Transfert thermique

Les longueurs d'établissement en régime turbulent sont souvent plus courtes qu'en régime laminaire. Ainsi peu de corrélations font intervenir cette grandeur. C'est la loi de Colburn que l'on retrouve le plus souvent :

$$Nu = 0,023 \cdot Re^{0,8} \cdot Pr^{0,33} \quad (I-31)$$

Elle est valable pour $0,5 < Pr < 100$; $Re > 10^4$ et $L/d_h > 60$. La viscosité est évaluée à la température de film définie comme la moyenne entre la température de paroi et la température de mélange.

Petukhov puis Gnielinski ont établi une autre relation, intéressante car valide en régime transitionnel : $2100 < Re < 10^6$ et pour $0 < d_h/L < 1$ et $0,6 < Pr < 2000$:

$$Nu = \frac{\frac{\Lambda}{8} (Re - 1000) \cdot Pr}{1 + 12,7 \sqrt{\frac{\Lambda}{8} \cdot (Pr^{2/3} - 1)}} \cdot \left(1 + \frac{d_h}{L}\right)^{2/3} \quad (I-32)$$

Avec, Λ , le coefficient de Darcy. Cette loi empirique décrit la majorité des résultats expérimentaux avec une erreur maximale de 20%.

Le chaos généré par la turbulence permet donc d'intensifier les transferts thermiques dans les conduites rectilignes par rapport à un écoulement laminaire. En contrepartie, les pertes de charge sont élevées mais ce ne sont pas les seules limitations. En effet, pour atteindre

des nombres de Reynolds de l'ordre de 10^4 , des débits conséquents sont nécessaires notamment lorsque le diamètre des conduites est petit. Ainsi, si l'on considère une canal dont le diamètre hydraulique vaut 2 mm, il faudra faire circuler le fluide, de l'eau à 25°C par exemple, à un débit de $70 \text{ L}\cdot\text{h}^{-1}$ ce qui représente une perte de charge linéique de 2 bars par mètre de conduite.

Or répétons que lorsque l'on met en œuvre une synthèse chimique, un temps de séjour minimal est requis, d'autant plus grand que la cinétique chimique est lente. Le régime turbulent favorise le mélange et donc la mise en contact des réactifs, il favorise le transfert thermique dans le cas où la réaction est exo- ou endothermique mais une longueur droite importante sera nécessaire pour atteindre des temps de séjour convenables. C'est la principale limitation du régime turbulent.

L'enjeu, en structurant les canaux, va donc être de s'approcher des performances de transfert atteintes en régime turbulent, voire de les dépasser tout en travaillant avec un faible débit pour maintenir un temps de séjour suffisant. Il faudra donc tenter de générer du chaos en maintenant des nombres de Reynolds faibles proches du régime laminaire.

I.2.2 ECOULEMENTS SECONDAIRES

I.2.2.1 Phénomène des recirculations de Dean

Contrairement aux écoulements en conduite rectiligne, les lignes de courant dans un canal incurvé ne sont pas parallèles à l'axe principal. Ce phénomène est dû à la présence de structures secondaires générées par la courbure du canal (cf. figure I.22).

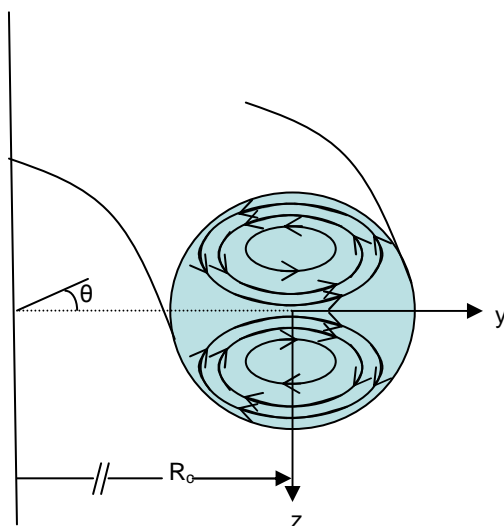


Figure I.22 : Cellules de recirculation secondaires et coordonnées du système, (x,y,z) x étant normal au plan.

En effet à l'entrée d'un coude, les éléments de fluide subissent les effets de la force centrifuge, F_c . Celle-ci est proportionnelle au carré de la vitesse axiale et normale à l'écoulement :

$$d\bar{F}_c = \frac{dm \cdot v_x^2}{R_c} \cdot \bar{y} \quad (I-33)$$

A cause de la contrainte de frottement à la paroi, la vitesse au cœur de l'écoulement est plus grande que le long des parois, la force centrifuge est donc plus importante. Il en résulte, au cœur de la section de passage, un mouvement de fluide du centre vers les parois (cf. figure I.22).

Lorsque la vitesse débitante est suffisamment importante pour négliger les effets de la viscosité et que $d_h \ll R_c$, l'équation des moments pour l'écoulement au cœur du canal s'écrit (Dean, 1928):

$$v_y v_y \frac{\partial v_y}{\partial y} + v_z \frac{\partial v_y}{\partial z} - \frac{v_x^2}{\left(\frac{R_c}{d_h}\right)} = -\frac{\partial P}{\partial y} \quad (I-34)$$

Ainsi plus la force centrifuge est importante, plus le gradient de pression est fort : les éléments de fluide au centre de l'écoulement vont être projetés contre le mur externe du coude et ceux situés le long des parois vont se déplacer de l'extérieur de la courbure vers l'intérieur, i.e. vers les basses pressions.

Ces boucles de recirculation ont été mises en équation pour la première fois par W.R. Dean (1928). Les premiers travaux expérimentaux (J. Eustice, 1911) ont montré que, contrairement au canal droit (cf. figure I.21), la perte de charge dans un canal courbe ne subissait pas de saut lors de la transition entre régime laminaire et régime turbulent. C'est la perturbation de l'écoulement par les structures rotationnelles secondaires qui en est à l'origine. Elles apparaissent à faible nombre de Reynolds et leur intensité dépend du nombre de Dean, De :

$$De = Re \cdot \sqrt{\frac{d_h}{R_c}} \quad (I-35)$$

R_c et d_h étant respectivement le rayon de courbure et le diamètre hydraulique. Dans le cas d'un canal dont le rayon de courbure est très grand devant le diamètre de la conduite (hypothèse de W.R. Dean), les premières structures secondaires apparaissent à :

$$Re = 36 \cdot \sqrt{\frac{R_c}{d_h}} \quad \text{soit} \quad De = 36 \quad (I-36)$$

La littérature est très riche sur le sujet des écoulements de Dean. De nombreux travaux, expérimentaux ou numériques, concernent les écoulements dans un tube hélicoïdal, un canal en U ou un coude unique (Vashtith et al, 2008 ; Naphon & Wongwises, 2006), le plus souvent en conduite de section circulaire. Les équations établies précédemment sont vraies quelque soit la géométrie, à condition de remplacer le diamètre par le diamètre hydraulique défini pour une section rectangulaire par la relation (I-6). Par la suite, nous ne nous concentrons que sur les canaux ondulés (succession de plusieurs coudes) de section rectangulaire ou carrée.

Dans ces géométries, lorsque le nombre de Dean augmente, soit en modifiant les paramètres géométriques (rayon de courbure ou diamètre) soit en augmentant la vitesse d'écoulement, l'équilibre entre force centrifuge, pression radiale et forces de viscosité est rompu et ne parvient plus à maintenir la structure des deux vortex stable. De plus,

l'accroissement du nombre de Dean pour un écoulement et une géométrie donnés tend à déplacer le pic de vitesse axiale vers la paroi externe de la courbure (cf. figure I.23).

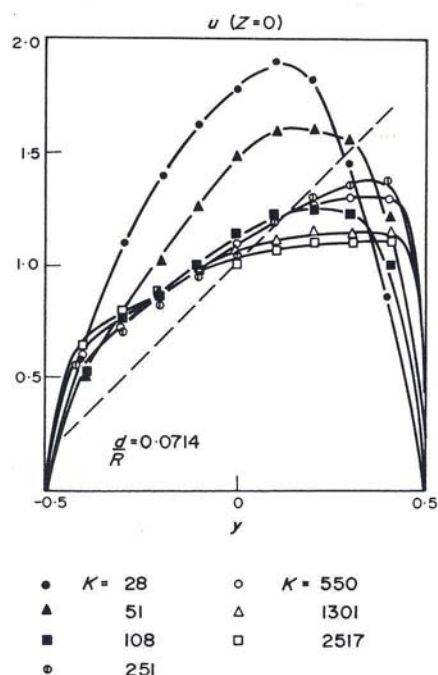


Figure I.23 : Profil de distribution de vitesse dans le plan normal à l'écoulement en sortie de coude en fonction du nombre de Dean ($=K$) (Mori et al., 1971).

Le gradient de vitesse devient donc très fort de même que le gradient de pression, déstabilisant de fait encore plus l'écoulement secondaire. Une nouvelle paire de boucles de recirculation apparaît alors, elles sont nommées vortex de Dean (cf. figure I.24).

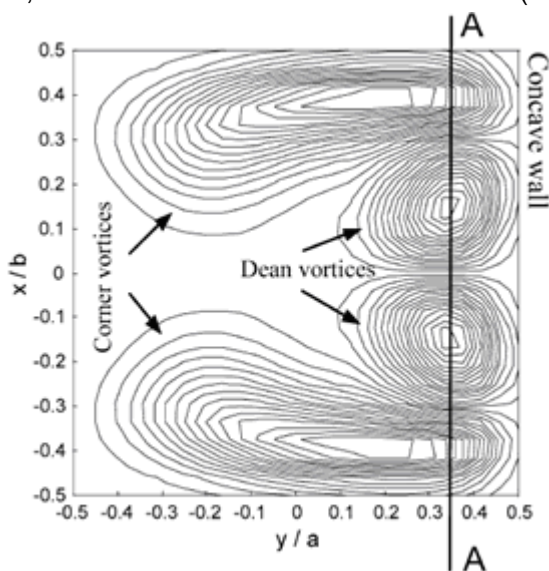


Figure I.24 : Cellules de recirculation secondaires (corner vortices) et vortex de Dean dans une section de passage carrée pour $De=150$ (Fellouah, 2006).

Tout en travaillant dans des gammes de Reynolds habituellement caractéristiques du régime laminaire, les phénomènes de recirculation permettent d'homogénéiser radialement les

champs de température, de vitesse et de quantité de mouvement en contrepartie d'une augmentation des pertes de charge. L'objectif est de déterminer la géométrie qui permettra la génération des vortex pour des nombres de Reynolds les plus faibles possible permettant ainsi l'intensification des transferts massiques et thermiques en conservant du temps de séjour.

1.2.2.2 Paramètres géométriques et nombre de Dean critique

Le tableau I.4 récapitule les données de la littérature concernant les paramètres géométriques étudiés ainsi que leur influence sur la structure de l'écoulement, uniquement dans le cas d'un canal de section rectangulaire.

Auteur(s)	Nature des travaux de recherche
Fellouah et al., 2008	Influence du facteur de forme, du rapport de courbure et de l'angle sur le nombre de Dean critique dans un canal en U de section rectangulaire ($13 \leq d_h \leq 37$ mm).
Manglik et al., 2005	Influence du facteur de forme sur la structure de l'écoulement dans des ailettes ondulées.
Chandratilleke & Nursubyakto, 2003	Mise en équation de l'écoulement et influence du facteur de forme sur sa structure dans un canal de section rectangulaire ($5 \leq d_h \leq 25$ mm).
Ligrani & Niver, 1988	Cartographie de l'écoulement en fonction de l'angle et du nombre de Dean dans un canal en U de section rectangulaire. Visualisation des vortex de Dean avec de l'air ($d_h = 25$ mm).
Sugiyama et al., 1983	Influence du facteur de forme et du rayon de courbure sur le nombre de Dean critique dans un canal en U de section rectangulaire ($13 \leq d_h \leq 30$ mm).
Joseph et al., 1975	Mise en équation des écoulements de Dean et influence du rayon de courbure sur la structure de l'écoulement dans un canal de section carrée. Confirmation expérimentale dans un canal hélicoïdal ($d_h = 24$ mm).

Tableau I.4 : Récapitulatif des principaux travaux menés sur la structure des écoulements secondaires en canal de section rectangulaire.

Le nombre de Dean critique, De_c , correspond à la valeur au-delà de laquelle apparaissent les vortex de Dean (cf. figure I.24). Il dépend de la géométrie du canal, notamment du facteur de forme, du rayon de courbure et de l'angle comme le montrent les figures I.25, I.26 et I.27.

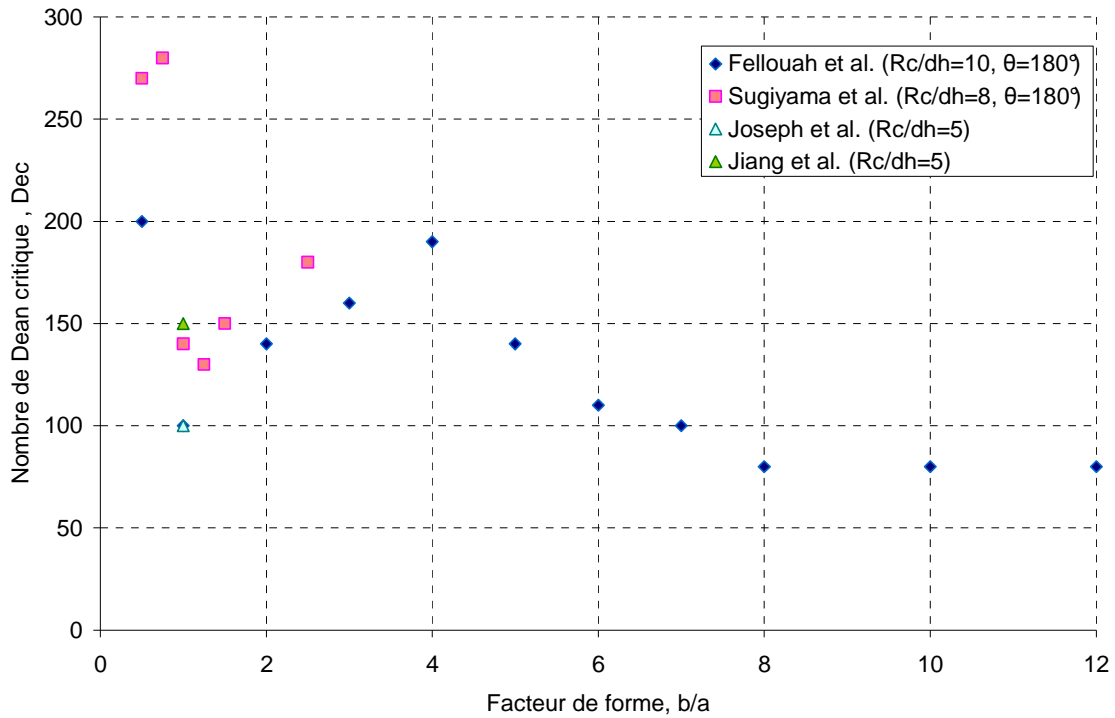


Figure I.25 : Influence du facteur de forme, b/a , sur le nombre de Dean critique.

Le nombre de Dean critique présente un minimum lorsque le facteur de forme vaut 1, i.e. lorsque la section du canal est carrée. Dans ce cas, le rayon de courbure n'a aucune influence sur l'apparition des vortex de Dean :

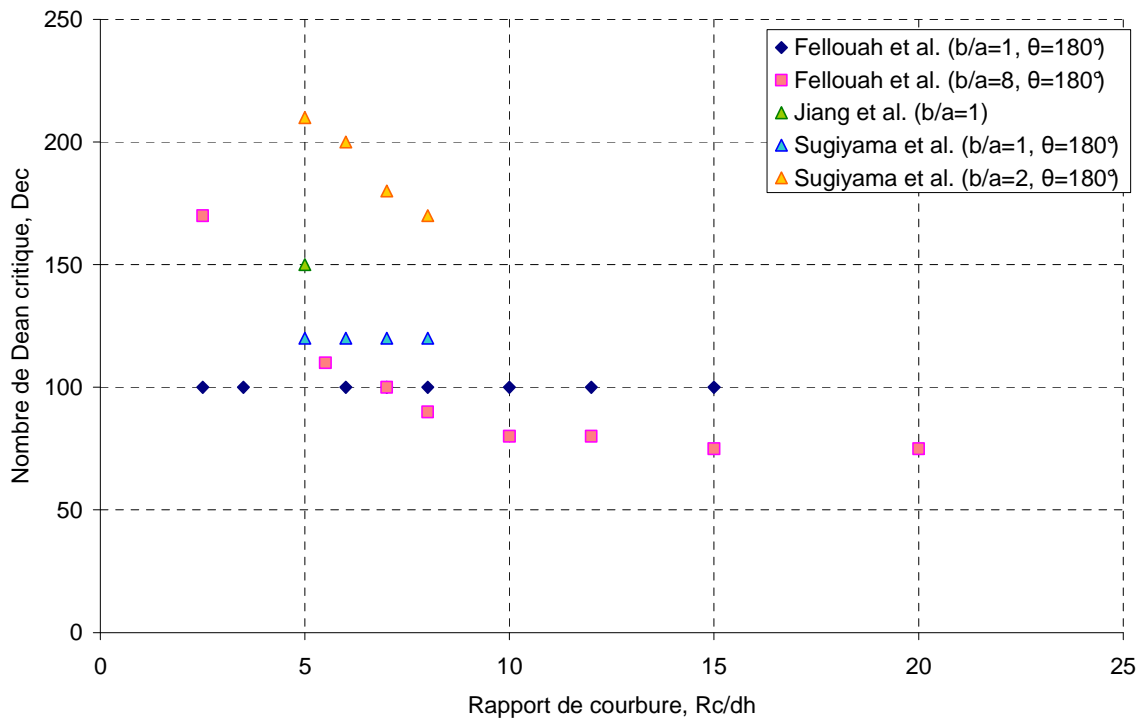


Figure I.26 : Evolution du nombre de Dean critique avec le rapport de courbure R_c/dh .

Enfin, la figure I.27 représente l'évolution du nombre de Dean critique avec la valeur de l'angle du coude :

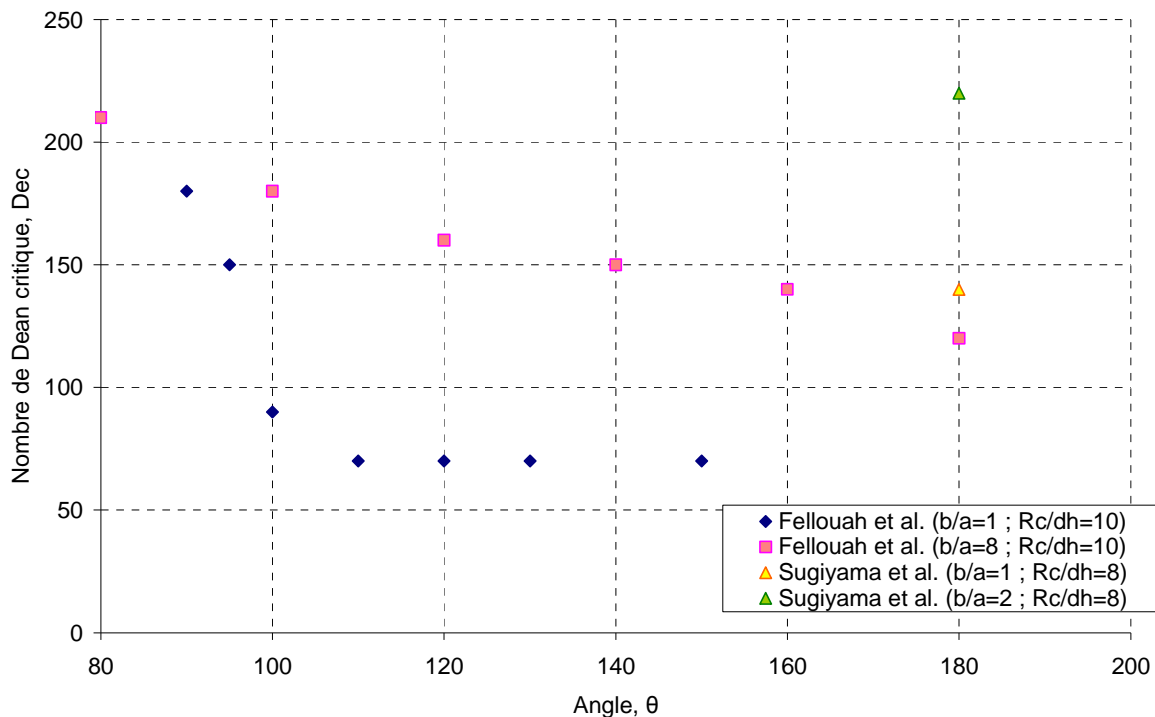


Figure I.27 : Evolution du nombre de Dean critique avec l'angle des coudes.

Les trois graphes montrent que la plage d'apparition de la seconde paire de boucles de recirculation, i.e. le nombre de Dean critique, se situe entre 80 et 250 pour un coude unique. Les différences entre les travaux sont principalement dues aux méthodes de détection des vortex de Dean, d'où une gamme plutôt large concernant le nombre de Dean critique.

Le fait d'enchaîner plusieurs coudes dont la courbure est inversée (canal ondulé) permet de réactiver les structures secondaires à chaque coude en inversant le sens d'action de la force centrifuge (Rosaguti et al., 2005). Schönfeld et Hardt (2004) ont montré que le fait de basculer de 1 à 2 paires de boucles de recirculation permettait de générer des structures chaotiques dans l'écoulement favorisant le mélange au sein du fluide réactionnel et améliorant la distribution du temps de séjour (Jiang et al., 2004). Ce résultat est atteint lorsque les paramètres géométriques du canal varient (rayon de courbure, diamètre hydraulique,...) ou lorsque des coudes de courbure inversée sont placés les uns à la suite des autres à condition que la longueur de courbure soit supérieure à $\pi \cdot R_c$. De nombreux auteurs ont étudié l'influence des paramètres géométriques des coudes sur les performances de transfert de chaleur, de mélange, sur les pertes de charge ainsi que sur la distribution du temps de séjour. Le tableau I.5 donne quelques corrélations et les conditions opératoires associées.

Auteur(s)	Corrélation	Conditions
Aubin et al., 2009	Distribution du temps de séjour en fonction du facteur de forme.	
Jiang et al., 2004	Temps de mélange et distribution du temps de séjour en fonction de De ($d_h=0.2$ mm).	$b/a=1$ $R_c/d_h=5$
Manglik et al., 2005 et Metwally & Manglik, 2004	Nombre de Nusselt et facteur de friction en fonction des nombres de Reynolds et de Prandtl, du facteur de forme et de l'amplitude des ondulations.	
Chandratilleke & Nursubyakto, 2003	Nombre de Nusselt en fonction du facteur de forme et de De .	$R_c/d_h=5$
Sturgis & Mudawar, 1999	Nombre de Nusselt en fonction du rayon de courbure et du nombre de Reynolds. $\frac{Nu}{Nu_0} = Re^{0,046} \cdot \left(\frac{d_h}{2R_{c,ext}} \right)^{0,1}$	$R_c/d_h=9,5$ $R_{c,ext}$ =rayon de courbure de la paroi externe
Mori et al., 1971	Nombre de Nusselt et facteur de friction en fonction du nombre de Dean au cœur de l'écoulement et dans la couche limite. $\frac{Nu}{Nu_0} = 0,0208 \cdot De^{4/5} \cdot \left(1 + 0,287 \cdot De^{-1/5} \right)$	$b/a=1$ $\theta=220^\circ$
Cheng & Akiyama, 1970	Nombre de Nusselt et facteur de friction de Fanning en fonction du facteur de forme, de De et du nombre de Prandtl. $\frac{(f \cdot Re)}{(f \cdot Re)_0} = 0,225 \cdot De^{0,39}$ $\frac{Nu}{Nu_0} = 0,182 \cdot De^{0,5} \cdot Pr^{0,25}$	$b/a=1$ $100 < De < 1500$ $1 < Pr < 10^4$ $b/a=1$ $Nu/Nu_0 < 1,5$

Tableau I.5 : Récapitulatif des travaux menés concernant l'influence des paramètres géométriques d'un canal ondulé sur les performances thermo-hydrauliques (Nu_0 correspond au canal rectiligne).

Les tableaux I.4 et I.5 montrent que pour évaluer les performances thermo-hydrauliques d'un canal coudé par rapport à une conduite rectiligne, seuls quelques paramètres géométriques varient : le rayon de courbure, l'angle des coudes et le facteur de forme. Malheureusement peu d'études ont été menées dans des canaux ondulés, i.e. présentant une succession de coudes de courbure inversée et la plupart des résultats expérimentaux ou numériques concernent un canal en U ou un tube hélicoïdal. Le principe de génération de structures secondaires reste le même. Seuls deux paramètres caractéristiques supplémentaires apparaissent : le pas et l'amplitude des ondulations (cf. figure I.28).

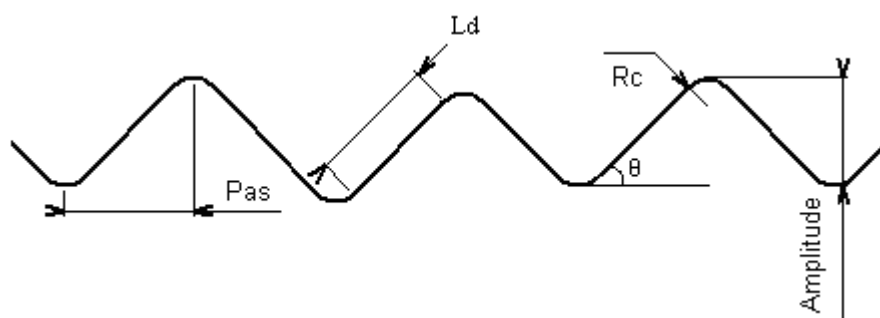


Figure I.28 : Paramètres géométriques pour un canal ondulé.

I.3 SYNTHÈSE

Associer réacteur et échangeur de chaleur au sein de la même unité nécessite des connaissances précises en termes de cinétique chimique, de transfert thermique, de distribution de temps de séjour, de mélange et de pertes de charge. Le challenge des échangeurs/réacteurs est de parvenir à maîtriser et intensifier les phénomènes de transfert thermique, massique et de quantité de mouvement tout en maintenant un temps de séjour adapté à la cinétique chimique et des pertes de charge convenables.

De plus, afin de pénétrer le marché industriel, il est nécessaire d'éviter une intensification à outrance et de maîtriser le facteur coût aussi bien en termes de fabrication que d'implantation (compacité, adaptabilité, polyvalence,...). Ce chapitre a permis de dresser un bilan des technologies existantes, de leurs avantages et inconvénients. Parmi les différentes voies d'intensification, la structuration 2D du chemin réactionnel semble être la plus prometteuse vis-à-vis des contraintes industrielles.

Peu de données sont disponibles dans la littérature concernant la mise en œuvre de ce type de dessin au sein même d'un échangeur/réacteur. La majorité des travaux concerne en effet l'étude d'un coude ou d'un tube hélicoïdal. Cependant, l'influence des paramètres géométriques reste la même sur l'écoulement et quatre d'entre eux sont décisifs : le facteur de forme, défini comme le rapport entre hauteur et largeur du canal, l'angle des coudes, leur rayon de courbure et la longueur droite entre chaque coude. Le choix de la géométrie optimale devra être compatible avec les techniques de fabrication industrielle à bas coût et répondre aux critères de compacité et de polyvalence.

C'est la préoccupation centrale de ce travail de thèse, que nous exposons dans les chapitres suivants.

CHAPITRE II STRATEGIE SCIENTIFIQUE

Ce chapitre a pour objectif de situer le présent travail de thèse dans le contexte plus général de la recherche scientifique et technologique poursuivie par l'équipe intensification de procédés au LGC. Le réacteur-échangeur, comme on l'a vu précédemment, occupe une place de choix dans la gamme des appareils intensifiés continus. Les rapports surface/volume élevés, offerts par ce type de technologie, ouvrent des perspectives remarquables d'intensification des transferts mais présentent simultanément l'inconvénient d'être sensibles aux phénomènes de corrosion ou d'encrassement, et ce d'autant que les performances en transfert autorisent d'opérer dans des conditions plus sévères qu'à l'habitude (en concentration, en température-pression, en choix de catalyseur,...). C'est une des raisons essentielles qui a conduit notre équipe à s'intéresser au matériau carbure de silicium, dont la résistance à la corrosion est absolument remarquable, tout en présentant des propriétés mécaniques et thermo-physiques intéressantes (en particulier conductivité thermique élevée dans une large gamme de températures). Nous présenterons dans le premier paragraphe l'exemple d'un prototype de réacteur-échangeur à plaques usinées en SiC, conçu au LGC et réalisé par une PME de la Région Midi-Pyrénées (la société BOOSTEC), spécialiste de la fabrication de composants en SiC.

De plus, l'intensification de procédé a pour ambition d'amener à des appareils plus compacts, réputés alors moins coûteux de par la réduction de taille. En fait, la recherche d'efficacité peut conduire à des dessins et des conceptions naturellement plus complexes qu'une simple cuve batch, entraînant des surcoûts, qui peuvent nuire à la compétitivité des technologies intensifiées. C'est pourquoi il faut toujours veiller *ab initio* à respecter un compromis entre objectif d'efficacité ou de productivité et capacité d'investissement. Sinon, le risque est grand de disposer de prototypes très performants qui ne soient jamais industrialisés. Ce constat est à l'origine du lancement d'un programme de recherche soutenu par l'ANR, dénommé RAPIC et d'un programme interdisciplinaire énergie du CNRS, baptisé EXTRAPOLIS, dont les objectifs sont d'établir les critères de conception et d'extrapolation de réacteurs-échangeurs intensifiés respectant les contraintes économiques. Ces deux projets seront évoqués dans les deux paragraphes suivants.

Enfin, pour conclure le chapitre, nous décrivons les dispositifs développés au cours de cette thèse, ainsi que les techniques de caractérisation aussi bien expérimentales que numériques.

II.1 L'ECHANGEUR/REACTEUR EN SiC

II.1.1 TECHNOLOGIE ET MATERIAU

La géométrie de l'échangeur/réacteur pilote est basée sur celle des échangeurs à plaques. Le prototype est composé de 7 plaques dont trois sont destinées au fluide réactionnel et quatre au fluide de refroidissement ou fluide 'utilité'. Chaque plaque

réactionnelle, en carbure de silicium, est placée en sandwich entre deux plaques 'utilité' (cf. figure II.1). Elles sont ensuite assemblées par serrage à l'aide de joints. Le SiC présente de nombreux avantages dont une bonne résistance vis-à-vis des milieux agressifs ou corrosifs, une conductivité thermique élevée ($\lambda=180 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ à 20°C) ainsi qu'une grande résistance mécanique.

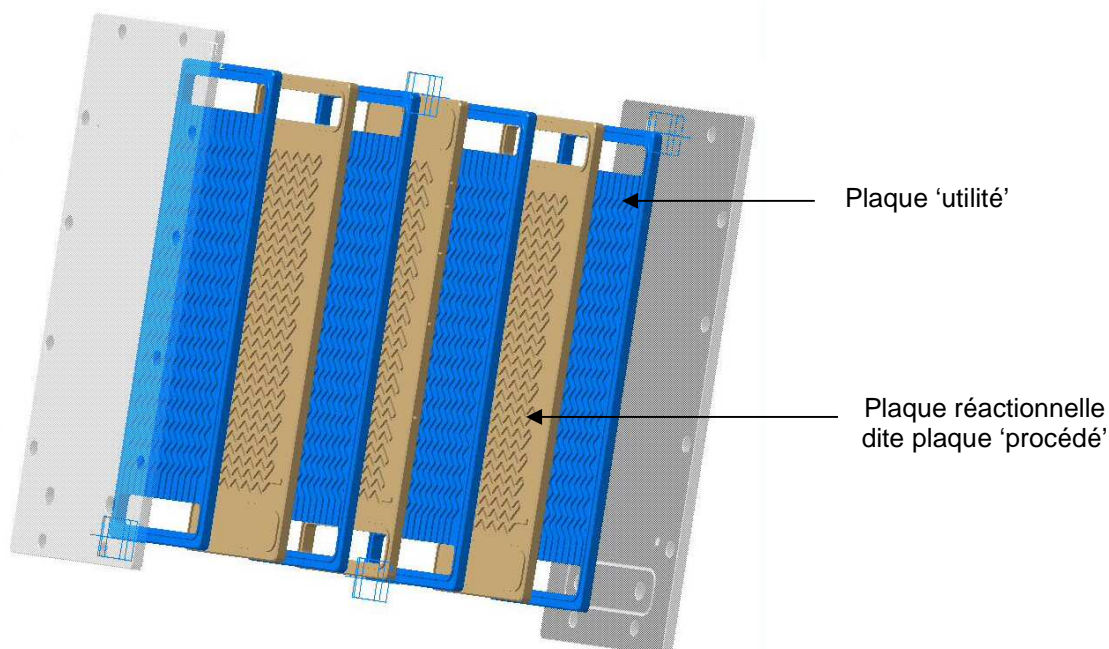


Figure II.1 : Schéma de l'échangeur/réacteur à plaques.

Sur chaque plaque réactionnelle un canal structuré en 2 dimensions a été gravé (cf. figure II.2).

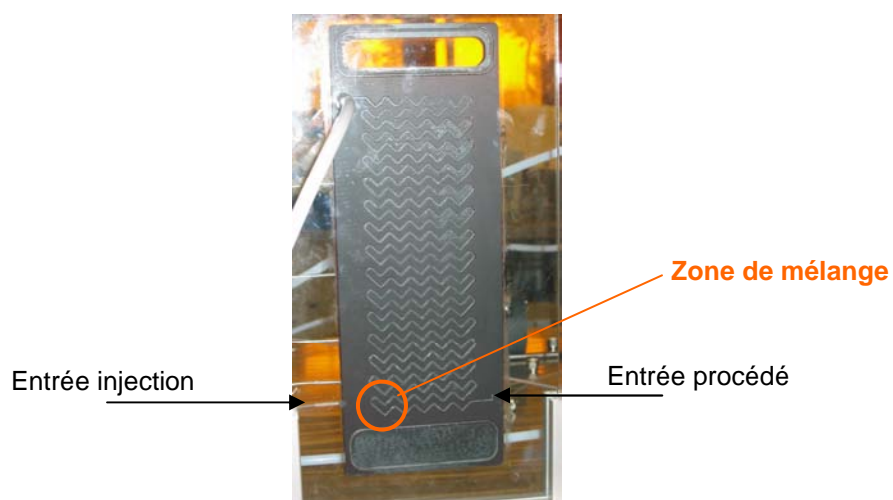


Figure II.2 : Photographie d'une des plaques 'procédé' fermée par une plaque de verre collée afin de réaliser les tests de mélange.

La plaque 'utilité' dispose, quant à elle, d'une quinzaine de canaux en parallèles. Leur géométrie et leur disposition d'une plaque à l'autre sont différentes de telle sorte que deux

configurations sont alors disponibles : le co-courant et le contre-courant. Les dimensions caractéristiques de chaque plaque et les paramètres géométriques du canal réactionnel sont fournis dans le tableau II.1.

	Procédé	Utilité
Volume d'une plaque (mL)	11,23	49,62
Diamètre hydraulique (mm)	2,03	2,03
Section de passage (mm ²)	3,69	3,69
Longueur développée d'une plaque (m)	3,04	4,94
Rayon de courbure (mm)	1,5	-
Longueur droite (mm)	6,97	-
Angle des coudes	90°	-
Facteur de forme (b/a)	1	-

Tableau II.1 : Dimensions caractéristiques de l'échangeur/réacteur.

II.1.2 PERFORMANCES DE L'ECHANGEUR/REACTEUR

Le design des canaux a été réalisé pour des applications industrielles type chimie fine ou pharmaceutique qui mettent principalement en œuvre des réactions exothermiques. Avant de tester l'appareil dans ces conditions, il est nécessaire d'évaluer au préalable ses capacités de transfert de chaleur pour éviter la formation de points chauds le long du canal réactionnel et maîtriser la température opératoire ainsi que ses capacités de mélange afin d'éviter notamment toute accumulation de réactifs. De plus, la détermination de la distribution du temps de séjour permettra de connaître le comportement de l'écoulement au sein des canaux et de s'assurer de l'absence de volumes morts ou de zones d'accumulations qui pourraient nuire à la sécurité du procédé et à la sélectivité des réactions.

II.1.2.1 Performances thermiques

Les expériences en eau permettent de déterminer le coefficient global de transfert de chaleur, U (Anxionnaz et al., 2009b). Les plaques 'procédé' sont alimentées avec un fluide chaud (eau distillée à 75°C) alors que le fluide 'utilité' est de l'eau à 12°C. A partir de la mesure de température entre l'entrée et la sortie de l'appareil, il est possible de déterminer la quantité de chaleur échangée, Q :

$$Q = \dot{m} \cdot C_p \cdot \Delta T \quad (\text{II-1})$$

puis le coefficient de transfert de chaleur, U :

$$U = \frac{Q}{A \cdot \Delta T_{ml}} \quad (\text{II-2})$$

A étant l'aire d'échange et ΔT_{ml} la moyenne logarithmique de température. Afin de comparer les performances thermiques de l'appareil avec d'autres technologies, on détermine un

facteur d'intensification, $(U \cdot A/V)$ exprimé en $W \cdot K^{-1} \cdot m^{-3}$, V correspondant au volume de fluide réactif.

A titre d'exemple, le profil de température, donné sur la figure II.3, le long du canal 'procédé' met en évidence l'efficacité des transferts thermiques puisque le pincement de température est très rapidement atteint. Le fluide 'procédé' entre à $75^\circ C$ ($\dot{m}_p=8 \text{ kg} \cdot h^{-1}$) et est refroidi par de l'eau à $10^\circ C$ ($\dot{m}_u=100 \text{ kg} \cdot h^{-1}$).

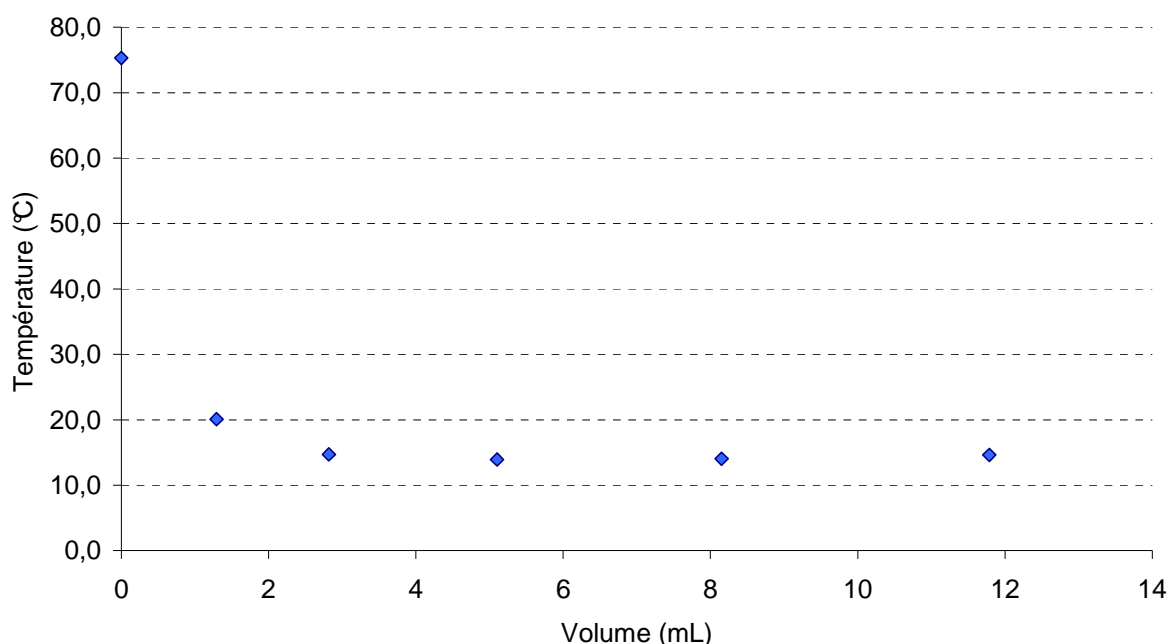


Figure II.3 : Profil de température le long du canal 'procédé' pour la 1^{ère} plaque– $Re=1000$.

Ainsi pour obtenir des données exploitables, il est nécessaire d'effectuer les mesures de température entre l'entrée et le 1^{er} thermocouple, placé à une distance de 0,3 m. L'efficacité thermique calculée varie alors de 77 à 97,5% et le facteur d'intensification est compris entre $6 \cdot 10^3$ et $20 \cdot 10^3 \text{ kW} \cdot K^{-1} \cdot m^{-3}$ dans une gamme de Reynolds variant de 500 à 4600. Rappelons quelques uns des ordres de grandeur donnés dans le tableau I.1 du chapitre I, notamment pour le réacteur discontinu ($U \cdot A/V=1 \text{ kW} \cdot K^{-1} \cdot m^{-3}$) et le réacteur tubulaire continu ($U \cdot A/V=200 \text{ kW} \cdot K^{-1} \cdot m^{-3}$).

II.1.2.2 Mélange et écoulement

Pour visualiser la capacité à mélanger, nous avons opté pour une méthode très simple, consistant à observer la zone de rencontre de deux solutions colorées (cf. figure II.2). La longueur de mélange est estimée comme étant celle nécessaire à l'homogénéisation du fluide. Le carbure de silicium étant un matériau sombre, les méthodes de visualisation classiques sont difficiles à mettre en œuvre à moins d'utiliser une solution fluorescente. Le principe de l'expérience est donc de faire circuler de l'eau dans le canal principal puis d'injecter de la fluorescéine en continu (cf. figure II.4).

Grâce à un dispositif d'éclairage UV, on peut alors visualiser l'écoulement dans la zone de mélange. La figure II.4 en est une illustration dans le cas d'un rapport de 0,3 et de 1 entre le

débit de fluorescéine et le débit d'eau. La zone de mélange n'est équivalente qu'à quelques coudes. Ainsi, on pourra considérer dans un premier temps que le mélange ne sera pas un facteur limitant dans le cas de la mise en œuvre de réactions au cours desquelles les rapports de débits entre le réactif principal et le réactif injecté est égal à 0,3.

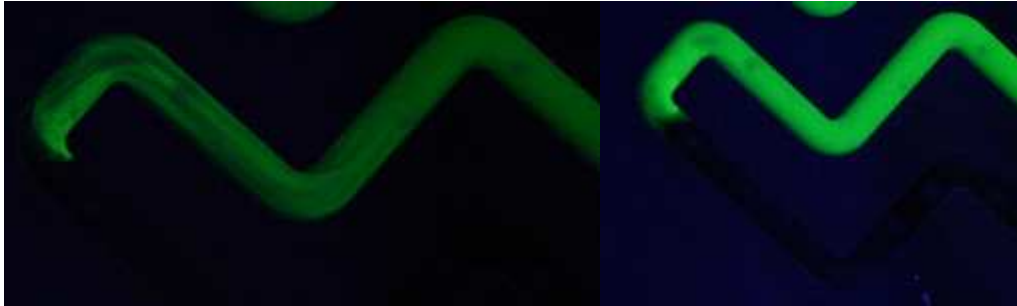


Figure II.4 : Zone de mélange entre la fluorescéine et l'eau. Le rapport du débit de fluorescéine sur le débit d'eau vaut (a) 0.3 et (b) 1 pour un nombre de Reynolds de 400.

Par ailleurs, l'allure de la distribution du temps de séjour fournit de nombreuses informations. Elle permet de s'assurer qu'aucun volume mort ou qu'aucun passage préférentiel n'est présent dans l'appareil. Un sel, le chlorure de potassium, est injecté à l'entrée de l'appareil et sa concentration est mesurée en sortie via une cellule de conductimétrie. La figure II.5 donne un exemple de la distribution du temps de séjour.

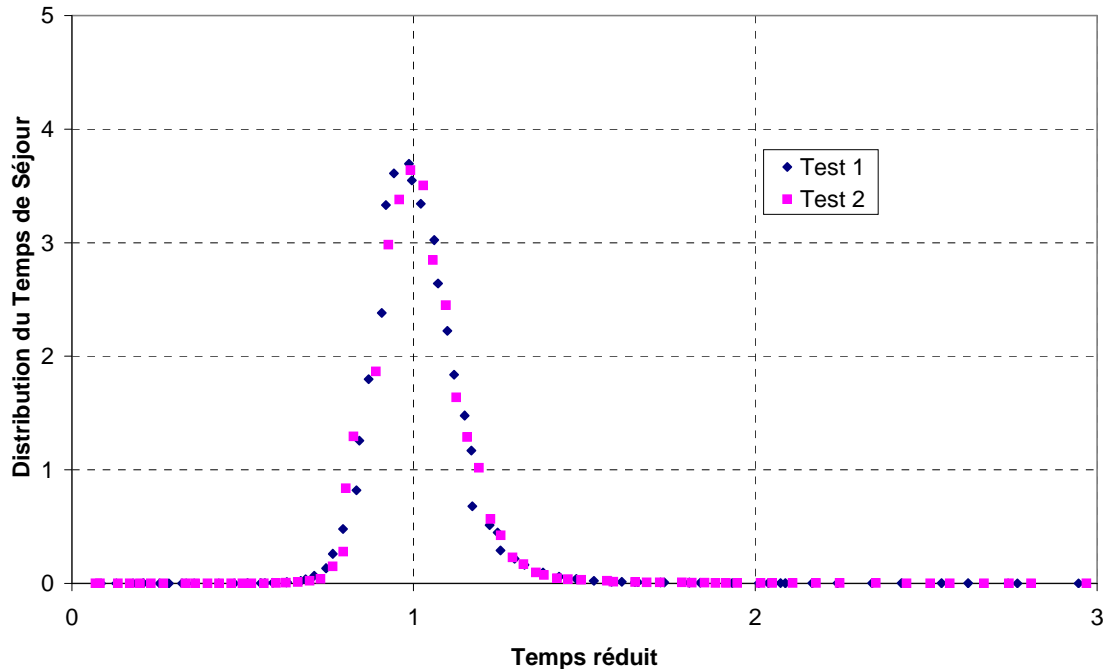


Figure II.5 : Courbes de distribution du temps de séjour pour un Reynolds de 550.

La quasi-symétrie autour de l'unité du temps réduit atteste du caractère piston de l'écoulement, le nombre de Péclet, Pe , étant égal à 100 pour cette expérience. Avec :

$$Pe = \frac{L \cdot v}{D_A} \quad (\text{II-3})$$

De plus l'absence de pics supplémentaires et de traînée permettent de s'assurer du bon fonctionnement de l'appareil. En effet, il ne présente pas de court-circuit ni de zones de recirculations ou de volumes morts.

La validation des étapes précédentes est indispensable afin de conduire en toute sécurité les réactions tests. Deux synthèses chimiques exothermiques ont été mises en œuvre : l'oxydation du thiosulfate de sodium par le peroxyde d'hydrogène et l'hydrosilylation d'une huile silicone.

II.1.2.3 Réactions tests

Les réactions mises en jeu sont très fortement exothermiques. Pour comparer leur exothermicité, l'élévation adiabatique de température, ΔT_{ad} , est calculée. Elle dépend des conditions opératoires en débit et concentration et des caractéristiques de la réaction, notamment la quantité de chaleur générée par mole de réactif consommé, ΔH_r .

$$\Delta T_{ad} = \frac{\Delta H_r \cdot \dot{n}}{\dot{m} \cdot C_p} \quad (\text{II-4})$$

a. Oxydation du thiosulfate de sodium par le peroxyde d'hydrogène

Cette réaction exothermique ($\Delta T_{ad}=120^\circ\text{C}$), identique à celle mise en œuvre dans le réacteur ShimTec[®], a été évoquée au chapitre I, paragraphe I.1.3.2. Les conditions opératoires (débits et concentrations) dans l'échangeur/réacteur SiC sont sensiblement les mêmes, seul le temps de séjour est différent et vaut dans ce cas 60 secondes. La température du fluide utilité est fixée à 35 °C puis à 50°C afin d'initier la réaction et d'accélérer sa cinétique. La conversion est calculée à partir des bilans thermiques en sortie de réacteur dans un vase calorifugé. Les résultats expérimentaux montrent qu'elle vaut 90% pour 35°C et 100% pour 50°C. Les profils de température et de conversion sont reportés sur la figure II.6.

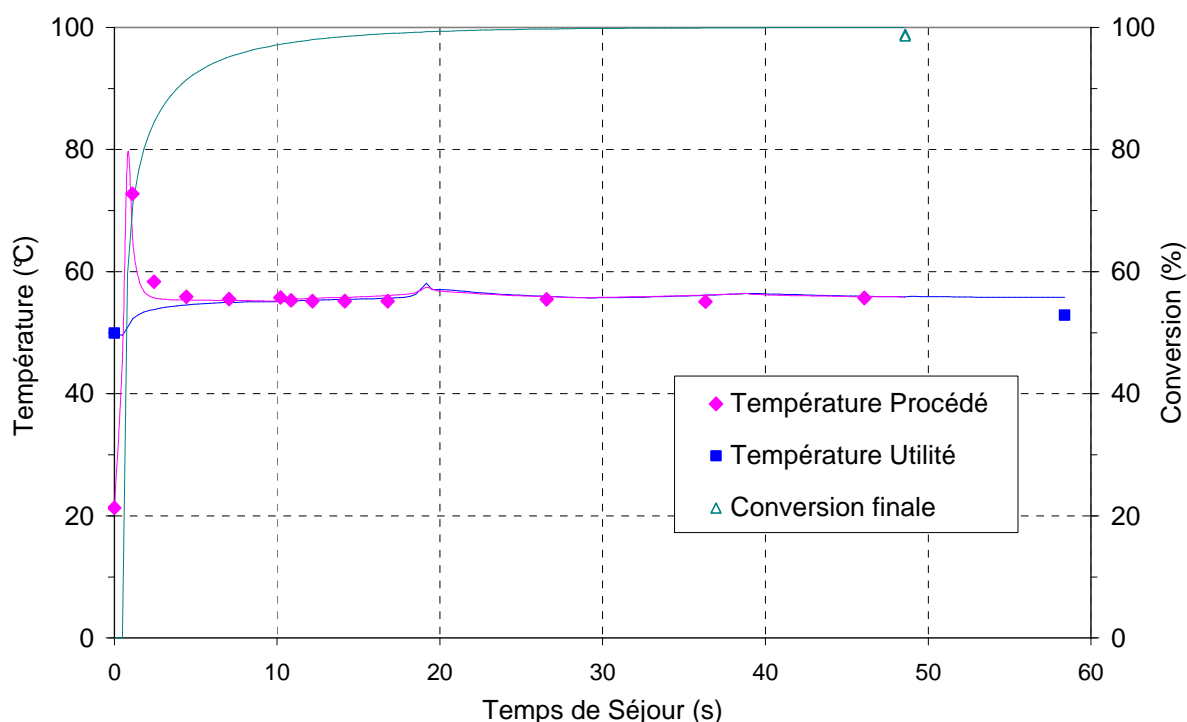


Figure II.6 : Profils de température et de conversion lors de la mise en œuvre de la réaction d'oxydation dans l'échangeur/réacteur SiC ($T_{\text{utilité}}=50^{\circ}\text{C}$).

La chaleur échangée entre le fluide réactionnel et l'eau de refroidissement est égale à $5 \cdot 10^3 \text{ kW} \cdot \text{m}^{-3}$. En reprenant le tableau de comparaison avec le réacteur discontinu classique (tableau I.2), on s'aperçoit que la réaction ne peut pas être mise en œuvre dans de telles conditions de température et que les temps opératoires dans l'échangeur/réacteur sont bien inférieurs aux temps de coulée nécessaires pour conduire la réaction en toute sécurité dans les procédés classiques.

Volume (m^3)	$1 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-2}$	0,1	1
Diamètre (m)	0,08	0,2	0,4	0,9
Hauteur (m)	0,2	0,3	0,8	1,4
Aire d'échange (m^2)	0,055	0,22	1,13	4,6
Q_{max}/V ($\text{kW} \cdot \text{m}^{-3}$)	1200	500	250	100
t_c (s)	230	560	1120	2800

Tableau II.2: Dimensions caractéristiques et chaleur maximale échangée pour un réacteur discontinu à double enveloppe, temps de coulée, t_c dans le cas de la conduite en mode semi-continu.

b. Réaction d'hydrosilylation

Cette réaction, encore plus exothermique ($\Delta T_{\text{ad}}=340^{\circ}\text{C}$), possède une cinétique très rapide et nécessite un catalyseur. Sa mise en œuvre dans l'échangeur/réacteur SiC a été caractérisée par Elgue et al. (2008). Des améliorations notables ont été constatées par rapport au procédé discontinu. Le temps de séjour a été réduit de 5-6 heures à 20 minutes, la sélectivité est meilleure pour une quantité de catalyseur moindre et l'opération unitaire de dévolatilisation située en aval n'est plus nécessaire. Cependant, contrairement à la réaction

d'oxydation, un temps de séjour conséquent est requis pour atteindre une conversion supérieure à 99%. Dans ce cas, l'échangeur/réacteur est utilisé en amont afin d'absorber la plus grande partie de la chaleur générée par la réaction (>95% de la chaleur totale) puis pour parfaire la conversion, on peut avoir recours ensuite à un réacteur agité continu.

II.1.3 ENJEUX ET PROBLEMATIQUE

Les caractérisations précédentes ont démontré l'efficacité de l'échangeur/réacteur à plaques pour la conduite de réactions exothermiques à l'échelle du laboratoire (~10 kg·h⁻¹). Le couplage technologie/matériau, i.e. structuration 2D/carbure de silicium, permet l'intensification des transferts thermiques et donc l'évacuation plus efficace de la chaleur de réaction, une meilleure maîtrise de la température opératoire et l'accélération des cinétiques chimiques.

Cependant, afin de diffuser cette technologie plus largement et espérer un développement industriel, d'autres contraintes sont à prendre en compte. L'appareil doit être suffisamment flexible pour accepter des variations de débits de production et basculer facilement d'un régime d'écoulement à un autre. Il doit être polyvalent afin d'accueillir une large gamme de réactions et de produits. L'extrapolation vers des débits industriels (100 voire 1000 kg·h⁻¹) ne doit pas détériorer ses performances et surtout, les coûts d'exploitation, d'installation et de fabrication ne doivent pas être prohibitifs.

Pour répondre à toutes ces attentes, il est nécessaire dans un premier temps de découpler la technologie elle-même du matériau et d'envisager toutes les possibilités de fabrication moins onéreuses et dont les méthodes sont mieux éprouvées à l'heure actuelle. Ensuite, **l'impact de la structuration**, elle-même, sur les performances de l'écoulement et **l'étude paramétrique** de la géométrie du canal doivent être considérés. Ces deux points permettront l'optimisation et l'extrapolation de la géométrie pour une utilisation industrielle sans chercher à intensifier de façon démesurée et superflue.

Les travaux de thèse s'inscrivent dans ce contexte et sont supportés par deux projets comme nous l'avons mentionné en préambule. Le premier, EXTRAPOLIS, est un projet interdisciplinaire du CNRS. Il vise à définir les règles d'extrapolation tout en considérant les aspects fondamentaux de conservation des performances atteintes à l'échelle pilote. Le second, nommé RAPIC, est financé par l'ANR et vise au développement industriel d'une technologie structurée d'échangeur/réacteur à bas coût. Ces projets sont évoqués dans les paragraphes qui suivent.

II.2 LE PROJET CNRS, EXTRAPOLIS

II.2.1 OBJECTIF DU PROJET

Les études portant sur l'échangeur/réacteur SiC, le réacteur ShimTec® (*Anxionnaz et al., 2009a*) et les échangeurs multifonctionnels garnis de mousses métalliques ou d'ailettes (*Ferrouillat et al., 2006a, 2006b, 2006c*) ont démontré l'efficacité de ces technologies à l'échelle du laboratoire (1-10 kg·h⁻¹). L'objectif du projet EXTRAPOLIS est de comprendre l'évolution des performances lorsque la taille de ces appareils augmente en vue d'une utilisation industrielle (production x 100 voire x 1000). Cette étape passe par

l'approfondissement des connaissances en termes de mélange, de transfert thermique, de pertes de charge et de distribution de temps de séjour dans des régimes d'écoulement habituellement évités (régime laminaire voire transitionnel) mais fréquents dans le cas des échangeurs/réacteurs structurés. Afin de proposer des solutions de maintien des performances deux étapes sont envisagées. Une première approche élémentaire vise à déterminer la structure géométrique optimale, conforme au cahier des charges et à la problématique de fabrication. L'établissement des lois constitutives locales est réalisé grâce à des outils numériques (modélisation CFD) et expérimentaux dont les maquettes à l'échelle du laboratoire qui ont été développées dans le cadre de cette thèse. La seconde approche concerne le développement d'un prototype. Il faut considérer à ce stade les contraintes d'assemblage et de scale-up dont les dimensions caractéristiques et les invariants auront été sélectionnés au préalable et vérifier expérimentalement et numériquement les prédictions d'extrapolation.

II.2.2 PRINCIPE DE SIMILITUDE

La question du changement d'échelle suppose la recherche d'invariants caractéristiques à conserver selon le principe bien connu de similitude. Le point commun aux développements et axes de recherche précédents réside dans la conservation des invariants. En effet, la formulation d'un phénomène physico-chimique doit être dimensionnellement homogène. Autrement dit, son expression ne doit pas dépendre du système d'unités choisi. Ainsi la similitude entre une maquette et son prototype est respectée si les grandeurs G , aux points homologues respectent la relation suivante dans laquelle k est une constante :

$$G_{\text{maquette}} = k \cdot G_{\text{prototype}} \quad (\text{II-5})$$

Cinq phénomènes principaux et donc autant de principes de similitude sont retenus pour l'extrapolation des échangeurs/réacteurs. Ils sont détaillés dans le tableau (II.3). L'analyse détaillée de chacun de ces phénomènes est nécessaire avant de débiter le processus d'extrapolation.

Principe de similitude	Grandeur conservée	Grandeur caractéristique
Géométrique	Rapport de dimensions caractéristiques	Facteur de forme = b/a ou d_h/L
Hydrodynamique	Régime d'écoulement	Nombre de Reynolds, $Re = \frac{\rho \cdot v \cdot d_h}{\mu}$
Thermique	Transfert de chaleur	Nombre de Nusselt, $Nu = \frac{h \cdot d_h}{\lambda}$
Mélange	Longueur de mélange	Nombre de Schmidt, $Sc = \frac{\nu}{D}$
	Dispersion axiale	Critère de Péclet, $Pe = \frac{v \cdot L}{D_A}$
Chimique	Rapport entre temps de séjour et temps de réaction	$\frac{t_s}{r_v / C_i}$

Tableau II.3 : Principes de similitude et invariants. r_v et C_i sont respectivement la vitesse de réaction ($\text{mol} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$) et la concentration en réactif ($\text{mol} \cdot \text{m}^{-3}$).

Lors du processus d'extrapolation, chaque principe devrait être respecté afin de changer d'échelle tout en conservant les performances initiales. Or chacun est caractérisé par ses invariants et ses dimensions caractéristiques propres (temps, longueur,...). Il devient impossible alors de respecter la condition générale de similitude (II-5), d'où la nécessité de déterminer des règles d'extrapolation. C'est ce à quoi s'attache le présent projet EXTRAPOLIS.

Nous reviendrons sur cette question de l'extrapolation dans le dernier chapitre de thèse.

II.3 LE PROJET ANR, RAPIC

II.3.1 DESCRIPTIF DU PROJET

II.3.1.1 Objectifs

Le projet RAPIC, pour Réacteur A Plaques Intensifié à Coût réduit, propose une démarche innovante pour le développement des échangeurs/réacteurs à l'échelle industrielle. L'objectif est de répondre aux contraintes de mise en œuvre de réactions exothermiques tout en s'approchant au plus près des technologies existantes sur le marché des échangeurs. La particularité de RAPIC réside dans la recherche de l'optimisation du couple performances/prix afin de répondre aux impératifs de coûts imposés par le marché. En effet, pour espérer développer industriellement ces technologies, le coût d'investissement de ces appareils ne doit pas excéder 3 fois celui d'un réacteur conventionnel. Actuellement, le rapport peut atteindre avec certaines technologies un facteur 10.

Le projet est donc agencé autour de deux thématiques :

- L'étude et l'optimisation de la géométrie des canaux réactionnels afin de déterminer le meilleur compromis compacité/coût/performances pour éviter une intensification à outrance qui implique forcément des coûts prohibitifs.

- L'étude de toutes les possibilités de fabricabilité et d'assemblage extrapolables à l'échelle industrielle afin de déterminer le meilleur rapport coût/maturité technologique.

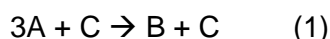
Les cahiers des charges répondant aux attentes industrielles ont été écrits. Ils concernent les données de production, de fabrication, d'assemblage et de coût.

II.3.1.2 Cahiers des charges

Le cahier des charges d'un industriel de la chimie est généralement articulé autour de trois points :

- Définition de la cible chimie
- Définition de la cible de production
- Définition de la cible coût du réacteur

A titre d'exemple, dans le projet RAPIC, la cible chimie est la suivante. Il s'agit de réactions chimiques exothermiques ($\Delta T_{ad} \approx 200^\circ\text{C}$) dont le schéma réactionnel est représenté par :



Les constantes cinétiques suivent une loi d'Arrhénius et sont fournies dans un livrable (confidentiel) du projet ANR. La conversion recherchée est égale à 20% et la température réactionnelle ne doit pas s'élever de plus de 10°C sans quoi la réaction (2) est trop favorisée et nuit à la réaction (1). Pour une production de 4000 L·h⁻¹ de produit B le volume de l'échangeur/réacteur à plaques en fonction du pouvoir d'échange doit varier comme l'indique le tableau II.4. La perte de charge admissible est fixée à quelques bars.

		UA/V (kW·K·m ³)		
		290 kW·K·m ³	580 kW·K·m ³	1100 kW·K·m ³
Température utilité	85°C	0,254 m ³	0,190 m ³	0,143 m ³
	90°C			
	95°C			

Tableau II.4 : Evolution du volume de l'échangeur/réacteur en fonction du pouvoir d'échange volumique.

A iso-productivité, le coût d'investissement ne devra pas excéder celui d'un réacteur classique discontinu.

Pour la fabrication du prototype (CEA/LTH) quatre méthodes sont envisagées : le cintrage de tube noyé dans de la poudre de cuivre, le cintrage de tube dans une plaque usinée placée entre deux plaques de cuivre, l'usinage non-traversant du canal réactif fermé par soudure TIG ou laser et l'usinage traversant du canal fermé par deux plaques de cuivre. L'assemblage final est réalisé par Compaction Isostatique à Chaud (CIC). Ce procédé consiste à placer les maquettes dans une enceinte fermée. Elles subissent ensuite des cycles de mise sous pression et de montée en température (typiquement 1000 bars – 1000°C) pour ne former au final plus qu'un seul bloc de matière. Le principal risque lié à ce

mode d'assemblage est la déformation post-CIC, notamment dans le cas du remplissage avec des poudres (taux de vide égal à 30%). Cet inconvénient peut gêner l'équipementier du projet RAPIC (Fives Cryo) qui exige une planéité des faces externes de $\pm 0,1$ mm afin d'y braser les ailettes destinées au fluide utilité. L'enjeu est donc de déterminer la technologie offrant le meilleur rapport performance/coût tout en ayant déjà une certaine maturité technologique.

L'optimisation de la géométrie, qui fait l'objet de ce travail de thèse, prend en considération les requêtes industrielles tant en ce qui concerne les performances (thermo-hydrauliques, chimiques,...) que les méthodes de fabrication. Certaines géométries très efficaces peuvent en effet ne pas être réalisables selon les méthodes de fabrication précédemment citées. Par la suite, nous garderons donc en mémoire ces contraintes.

II.3.2 OUTIL THERMO-HYDRAULIQUE GLOBAL

Pour guider notre travail de conception de géométrie, nous avons opté pour une modélisation simple sous Excel, qui permet d'évaluer le gain potentiel en termes de performances et de compacité des canaux structurés par rapport aux conduites rectilignes classiques. L'outil, qualifié de thermo-hydraulique global, estime les transferts de chaleur et les pertes de charge dans le canal réactif et prédit la taille de la maquette finale. Cinq géométries ont été testées : les canaux droits vides de section circulaire puis garnis avec un insert twisté (cf. figure II.7) ; un canal de section carrée puis de section rectangulaire et enfin la structuration bidimensionnelle du canal carré.



Figure II.7 : Photographie de l'insert twisté placé dans les tubes rectilignes ($d_t=8$ mm).

Le tableau II.5 donne le cahier des charges utilisé pour ces modélisations. Les données géométriques et les résultats sont présentés dans le tableau II.6. Tous les calculs ont été réalisés de manière à respecter la contrainte sur l'échange de chaleur.

F_p ($m^3 \cdot h^{-1}$)	4
t_s (s)	171
V_{fluide} (m^3)	0,19
ΔP (bar)	1
$h_p A/V$ ($kW \cdot K^{-1} \cdot m^3$)	580

Tableau II.5 : Cahier des charges retenu pour les modélisations thermo-hydrauliques.

Les données géométriques du tableau II.6 correspondent à des tubes et plaques de dimensions standard. Le nombre de passes a été calculé de telle sorte à avoir le plus de tubes par plaques. Ajouter n plaques en parallèle permet de diviser le débit par n dans chaque plaque. Les pertes de charge diminuent et le temps de séjour par plaque augmente. En contrepartie, le transfert thermique diminue. S'il devient inférieur à la requête du cahier

des charges, il faut diminuer le nombre de plaques en parallèle jusqu'à obtenir dans chaque plaque le niveau d'échange requis et si dans ce cas le temps de séjour n'est plus suffisant, alors il faut ajouter n plaques en série.

Les pertes de charge et le coefficient de transfert de chaleur pour les canaux rectilignes vides sont calculés à partir des relations de la littérature fournies dans le chapitre I (I-12 ; I-16 ; I-29 ; I-31). Afin d'obtenir des coefficients de transfert convenables, les vitesses débitantes doivent être importantes pour atteindre le régime turbulent, il faut donc réduire le nombre de plaques en parallèle pour augmenter le débit dans chaque canal. Dans le cas n°1 (section circulaire), 16 plaques en parallèle et 3 plaques en série sont requises. Cependant, cette technologie n'est pas satisfaisante car les pertes de charge générées sont beaucoup trop importantes par rapport au cahier des charges (cf. tableau II.6).

La première solution envisageable consiste à placer des inserts twistés dans le tube (figure II.7). Les corrélations permettant de calculer l'échange de chaleur et les pertes de charge en régime turbulent sont données dans l'article de Manglik & Bergles (1993).

$$f = \frac{0,0791}{Re^{0,25}} \cdot \left(\frac{\pi}{\pi - 4\delta/d} \right)^{1,75} \cdot \left(\frac{\pi + 2 - 2\delta/d}{\pi - 4\delta/d} \right)^{1,25} \cdot \left(1 + \frac{2,752}{y^{1,29}} \right) \quad (II-6)$$

$$\frac{Nu}{Nu_{y=\infty}} = 1 + \frac{0,769}{y} \quad (II-7)$$

$$Nu_{y=\infty} = 0,023 \cdot Re^{0,8} \cdot Pr^{0,4} \left(\frac{\pi}{\pi - 4\delta/d} \right)^{0,8} \cdot \left(\frac{\pi + 2 - 2\delta/d}{\pi - 4\delta/d} \right)^{0,2} \quad (II-8)$$

δ , d et y sont respectivement l'épaisseur de l'insert, le diamètre du tube et le rapport entre le pas des hélices et le diamètre du tube.

Données géométriques	Tube circulaire (1)	Tube carré (2)	Tube rectangulaire (3)	Insert twisté (4)
Largeur du canal (m)	-	0,006	0,010	-
Hauteur du canal (m)	-	0,006	0,005	-
Diamètre hydraulique (m)	0,008	0,006	0,0067	0,008
Epaisseur des tubes			0,001	
Largeur de la plaque (m)			0,8	
Longueur de la plaque (m)			1,25	
Epaisseur de la plaque (m)			0,02	
Résultats				
Nombre de passes par plaque	60	80	60	60
Nombre de plaques en parallèle	16	34	21	65
Nombre de plaques en série	3	2	3	1
$h_p A/V$ (kW·K ⁻¹ ·m ³)	593	584	596	596
ΔP (bar)	9,47	5,68	7,33	1,95
t_s (s)	166	220	213	185
V_{fluide} (m ³)	0,20	0,27	0,25	0,22
V_{total} (m ³)	0,96	1,36	1,26	1,30

Tableau II.6 : Résultats de la modélisation thermo-hydraulique élémentaire.

Pour maintenir la consigne en transfert de chaleur, le nombre de tubes en parallèle est passé de 16 à 65, ce qui signifie que le débit dans chaque tube a été divisé par 3,8. L'échange de chaleur est donc beaucoup plus efficace dans la géométrie 'insert twisté'. Cependant, même si les pertes de charge ont nettement diminué, elles restent malgré tout trop importantes et le volume de l'appareil a augmenté de 50%. De plus, l'utilisation des inserts est limitée dans les cas de produits visqueux ou encrassants.

Une autre possibilité consiste à réduire le diamètre hydraulique. Les tubes de section rectangulaire et carrée permettent respectivement de réduire les pertes de charge de 25% et de 50% par rapport au tube circulaire. Cependant, elles restent encore supérieures à la consigne. En fait, dans les tubes droits, quelle que soit leur section de passage, le transfert de chaleur n'augmente que si le régime d'écoulement se rapproche du turbulent, engendrant de ce fait d'importantes pertes de charge.

C'est pourquoi la structuration du canal paraît indispensable. Le tableau II.7 donne un premier ordre de grandeur des performances attendues et de la compacité de l'appareil.

Données géométriques	Tube ondulé (réacteur SiC)
Largeur du canal (m)	0,008
Hauteur du canal (m)	0,008
Diamètre hydraulique (m)	0,008
Epaisseur des tubes	0,001
Largeur de la plaque (m)	0,8
Longueur de la plaque (m)	1,25
Epaisseur de la plaque (m)	0,02
Résultats	
Nombre de passes par plaque	46
Nombre de plaques en parallèle	50
Nombre de plaques en série	1
$h_p A/V$ (kW·K ⁻¹ ·m ³)	584
ΔP (bar)	0,8
t_s (s)	232
V_{fluide} (m ³)	0,3
V_{total} (m ³)	1,00

Tableau II.7 : Résultats de la modélisation thermo-hydraulique pour un tube carré ondulé.

Les pertes de charge et le coefficient de transfert de chaleur ont été estimés à partir des données expérimentales du paragraphe I.1. Les corrélations empiriques utilisées sont les suivantes :

$$Nu = 0,25 \cdot Re^{0,62} \cdot Pr^{0,33}$$

$$\Lambda_{\text{lam}} = \frac{253,6}{Re}$$

$$\Lambda_{\text{turb}} = \frac{5,06}{Re^{0,5}}$$

Il faut cependant rester prudent. Ces lois ont été établies à partir des campagnes d'expérimentation sur l'échangeur/réacteur SiC. Elles ont été implémentées dans la modélisation sous Excel qui reste un outil élémentaire. Elles permettent donc simplement de donner un premier ordre de grandeur quant aux performances de cette géométrie par rapport aux canaux rectilignes.

Néanmoins, la tendance qui se dégage par rapport aux géométries précédentes est intéressante. Tout en maintenant les performances thermiques constantes et égales à celles du cahier des charges, les canaux ondulés permettent de lever le verrou sur les pertes de charge puisqu'elles deviennent inférieures à 1 bar sans toutefois nécessiter un volume d'appareillage trop grand.

C'est donc cette géométrie qui paraît la plus prometteuse. Elle doit maintenant être étudiée plus spécifiquement afin d'affiner les corrélations thermo-hydrauliques, d'optimiser la géométrie des canaux et de définir les lois qui permettront l'extrapolation à l'échelle industrielle. De plus, même si les performances globales paraissent excellentes, elles doivent être connues à l'échelle locale. En effet, dans le cas de mises en œuvre de réactions exothermiques, les points chauds peuvent se former très localement (à l'injection par exemple) et il est alors nécessaire d'évacuer localement toute la chaleur dégagée.

II.3.3 CONCLUSIONS

Les projets EXTRAPOLIS et RAPIC ont en commun la mise à l'échelle industrielle d'un échangeur/réacteur. Le second fait intervenir en plus le couple performances/coût qui est de nos jours la principale barrière à l'industrialisation de ces appareils innovants. L'outil de modélisation globale et les caractérisations de l'échangeur/réacteur SiC ont démontré le potentiel lié à la structuration 2D du chemin réactionnel. Cependant, avant d'établir les règles d'extrapolation, il est nécessaire de connaître précisément les lois thermo-hydrauliques et de dissocier l'influence du matériau de celle de la structuration des canaux.

Au travers de la réalisation et de la caractérisation de plusieurs maquettes dont la géométrie du canal varie, nous nous proposons d'étudier l'influence de chaque paramètre géométrique sur les performances thermo-hydrauliques. De plus, afin de mieux comprendre la manière dont est régi l'écoulement dans les canaux ondulés, des simulations numériques (code CFD) ont été mises en œuvre. La mise en place de ces outils de travail est détaillée dans les deux paragraphes suivants.

II.4 CONCEPTION ET MISE EN ŒUVRE DES MAQUETTES

Les maquettes sont la base du dispositif expérimental développé au cours de cette thèse. Elles vont permettre d'acquérir les données expérimentales nécessaires à la meilleure compréhension des phénomènes thermo-hydrauliques et de répondre aux questions suivantes :

- Quel est l'impact de la structuration 2D du chemin réactionnel sur les performances thermo-hydrauliques ?
- Comment optimiser le couple performances/géométrie ?

- Comment déterminer les règles d'extrapolation ?

Il faut de plus garder en mémoire les deux contraintes liées au passage en continu que sont l'intensification des transferts dans des gammes de Reynolds typiques du régime laminaire et la conservation de l'écoulement piston avec un temps de séjour suffisant à la chimie.

Le concept des maquettes est fondé sur celui des échangeurs/réacteurs type échangeurs à plaques. Les maquettes sont donc composées de plaques réactionnelles et de plaques de refroidissement placées en alternance. Pour la caractérisation du canal 'procédé' à l'échelle du laboratoire seules trois plaques sont nécessaires : la plaque 'procédé' (ou plaque réactionnelle), la plaque 'utilité' (ou plaque de refroidissement) et une plaque permettant de fermer les canaux 'utilité' dite plaque de fermeture (cf. figure II.8).

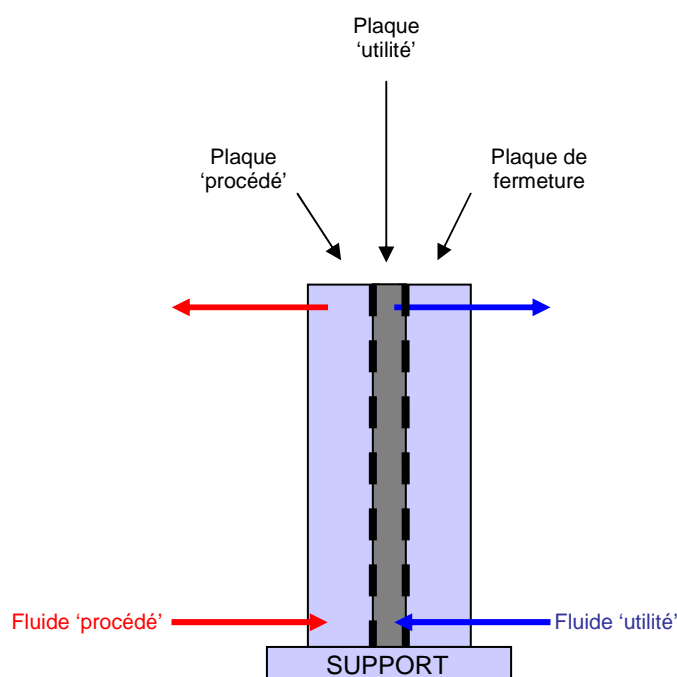


Figure II.8 : Schéma de principe des maquettes expérimentales.

II.4.1 CHOIX DES MATERIAUX

Les caractérisations expérimentales mises en œuvre sont classées en deux catégories. La première concerne la compréhension des performances du chemin réactionnel ou canal 'procédé' et leur corrélation aux paramètres géométriques. La seconde permet de caractériser thermiquement le comportement global de la maquette en tant qu'échangeur/réacteur.

En fonction des caractérisations, un certain nombre de contraintes relatives au matériau apparaissent. Elles figurent dans le tableau II.8 :

Caractérisations expérimentales	Contraintes de mise en œuvre	Propriétés du matériau requises
Mélange global	- Produits chimiques : iode et thiosulfate de sodium ; - Visualisation directe de l'écoulement	- Résistance chimique ; - Transparence côté 'procédé'
Micromélange	- Produits chimiques : acides et iode - Cellules spectro-photométriques (raccords Swagelok)	- Résistance chimique - Facilité d'usinage, taraudage et étanchéité aux raccords
Pertes de charge	- Raccords Swagelok + visserie	- Facilité d'usinage, taraudage et étanchéité aux raccords
Distribution du temps de séjour	- Cellules spectro-photométriques (raccords Swagelok)	- Facilité d'usinage, taraudage et étanchéité aux raccords
Thermique (plaque 'utilité')	- Résistance thermique de la plaque minimale - Usinage des canaux 'utilité'	- Bonne conductivité thermique + Epaisseur de la plaque minimale ; - Dureté moyenne
Thermique (plaque 'procédé' et plaque de fermeture)	- Pas de pertes thermiques vers l'extérieur ; - fluide chaud (80°C)	- Conductivité thermique faible + Epaisseur suffisante ; - Résistance jusqu'à 80°C.

Tableau II.8 : Contraintes sur les matériaux dues à la mise en œuvre des caractérisations expérimentales

L'usinage sera d'autant plus facile que la dureté du matériau est faible. Celle-ci est représentée sur l'échelle de Mohs par une valeur variant entre 0 (talc) et 10 (diamant).

Afin d'évaluer l'épaisseur suffisante pour ne pas avoir de pertes thermiques vers l'extérieur, le rapport λ/e (e étant l'épaisseur de la plaque et λ la conductivité thermique du matériau) est comparé au coefficient d'échange en convection naturelle. Si ce dernier est supérieur d'un facteur 10 environ, nous serons assurés de pouvoir négliger les pertes thermiques. C'est en régime laminaire que le coefficient de transfert de chaleur est minimal. Ainsi pour une géométrie donnée et une température de paroi constante, la relation permettant d'évaluer le nombre de Nusselt est la suivante :

$$Nu = 0,677 \cdot \frac{Pr^{0,25} \cdot Gr^{0,25}}{(0,95 + Pr)^{0,25}}$$

Avec Gr, le nombre de Grashof défini par :

$$Gr = \rho^2 \cdot g \cdot \beta \cdot (T_p - T_0) \cdot \frac{L^3}{\mu^2}$$

g , β , T_p et T_0 sont respectivement la constante gravitationnelle, le coefficient de dilatation volumique du fluide, et les températures de paroi et du fluide.

Pour un fluide à 80°C circulant dans un tube de 2 mm de diamètre et de 3,5 m de long et dont la paroi est à 10°C, le coefficient de transfert de chaleur par convection naturelle est

alors de l'ordre de $200 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$. Le rapport λ/e devra donc être inférieur à $20 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ pour négliger les pertes thermiques.

Finalement, la transparence de la plaque 'procédé' impose de travailler avec du verre ou avec un matériau plastique (PolyMétAcrylate de Méthyle ou PolyCarbonate). Les avantages et inconvénients respectifs sont récapitulés ci-dessous :

Avantages du verre :

- Bonne résistance chimique : inerte vis-à-vis des réactifs utilisés ;
- Bonne résistance en température ;
- Conductivité thermique moyenne, $\lambda=1 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$;

Inconvénients du verre :

- Usinage des pas de vis pour les raccords Swagelok difficile et risques de non étanchéité : dureté moyenne (5,5 sur l'échelle de Mohs) ;
- Usinage des canaux 'procédé' difficile ;
- Epaisseur de 50 mm pour négliger les pertes thermiques vers l'extérieur ($\lambda/e=20 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$).

Les données qui suivent, concernant les matériaux polymères, proviennent de la base de données ChemNet Base, « Polymers : A property DataBase » (Taylor & Francis group, 2007).

Avantages du PolyMéthacrylate de Méthyle (PMMA ou Plexiglas) :

- Résistance en température jusqu'à 80°C ($T_{\text{fusion}}=130^\circ\text{C}$) ;
- Résistance chimique vis-à-vis des acides lorsqu'ils sont dilués ;
- Usinage facile et possibilité de graver des pas de vis pour les raccords Swagelok : dureté de 2 sur l'échelle de Mohs ;
- Conductivité thermique faible, $\lambda=0,21 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$;
- Epaisseur égale à 10 mm au minimum pour négliger les pertes de chaleur ($\lambda/e=20 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$).

Inconvénients du PolyMéthacrylate de Méthyle (PMMA ou Plexiglas) :

- Ne résiste pas aux solvants et aux composés organiques ;
- Coloration du matériau avec l'iode.

Avantages du PolyCarbonate (PC) :

- Résistance en température jusqu'à 80°C ($T_{\text{fusion}}=233^\circ\text{C}$) ;
- Résistance chimique vis-à-vis des acides lorsqu'ils sont dilués ;
- Usinage facile et possibilité de graver des pas de vis pour les raccords Swagelok : dureté de 2 sur l'échelle de Mohs ;
- Conductivité thermique faible, $\lambda=0,18 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$: épaisseur de 10 mm requise pour négliger les pertes de chaleur ($\lambda/e=20 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$).

Inconvénients du PolyMéthacrylate de Méthyle (PMMA ou Plexiglas) :

- Ne résiste pas aux solvants et aux composés organiques ;

- Coloration du matériau avec l'iode ;
- Transparence réduite lorsque l'épaisseur augmente ;
- Altération au cours du temps des propriétés mécaniques du PC lorsqu'il est exposé à l'eau chaude ($T > 60^{\circ}\text{C}$).

Les propriétés du PMMA et du PC sont équivalentes. La coloration du matériau par l'iode peut être évitée en rinçant immédiatement les maquettes à l'eau ou au thiosulfate de sodium, ce n'est donc pas un inconvénient majeur. Le verre, quant à lui, est plus contraignant. Il est difficile de l'usiner, notamment pour les pas de vis permettant de raccorder la maquette au banc d'essai. Leur fragilité risquerait de compromettre l'étanchéité. De plus, le coût d'une dizaine de plaques de verre de 50 mm d'épaisseur est largement supérieur à celui des matériaux plastiques.

Du fait de l'atténuation de la transparence avec l'épaisseur dans le cas du PolyCarbonate, c'est le PMMA qui finalement a été retenu pour la fabrication des plaques 'procédé' et de fermeture des maquettes.

Concernant la plaque 'utilité', seuls les métaux permettent d'obtenir une conductivité thermique élevée ; malheureusement ce sont des matériaux relativement durs et donc difficiles à usiner, à l'exception de l'aluminium dont la conductivité thermique est de l'ordre de $237 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ pour une dureté de 2,75 sur l'échelle de Mohs. Cependant, il réagit violemment avec les halogènes dont l'iode, il faudra donc pouvoir retirer la plaque 'utilité' lors des caractérisations du mélange et ne travailler qu'avec la plaque 'procédé' et la plaque de fermeture.

II.4.2 MISE EN ŒUVRE

Les maquettes sont donc constituées de trois plaques. Une plaque d'aluminium, de 7 mm d'épaisseur, prise en sandwich entre deux plaques de PMMA dont l'épaisseur est fixée à 20 mm. Les canaux 'procédé' et 'utilité', de section carrée ou rectangulaire, sont usinés respectivement sur une des deux plaques de plexiglas et sur la plaque d'aluminium. C'est donc en assemblant les plaques les unes avec les autres que les canaux seront fermés. Le principe est identique à celui des échangeurs à plaques.

Afin de tester le plus grand nombre de géométries possible, la fabrication des maquettes doit être simple, leur mise en œuvre et assemblage rapides et les délais de livraison courts. L'étape limitante lors de la fabrication concerne l'usinage des canaux 'procédé' puisque pour chaque géométrie, une plaque sera nécessaire. Pour plus de réactivité, il est donc préférable de graver les maquettes sur place, au laboratoire.

L'acquisition d'une mini-fraiseuse numérique (CharlyRobot) a permis de lever ce verrou et d'usiner facilement et rapidement des canaux de section carrée ou rectangulaire.

II.4.2.1 Le CharlyRobot

Cette fraiseuse numérique (cf. figure II.9) permet d'usiner (en 2D ou en 3D) une large gamme de matériaux allant des mousses aux métaux 'tendres'. Elle est donc tout à fait adaptée aux matériaux sélectionnés dans ce travail : le plexiglas et l'aluminium. Les

dimensions du plateau sont de 375 x 330 mm, fixant ainsi les dimensions maximales des maquettes. L'outil à graver est une fraise à fond plat. Cette caractéristique permet d'usiner des canaux carrés ou rectangulaires, leur largeur étant fixée par le diamètre de la fraise.



Figure II.9 : Photographie du CharlyRobot.

Les courses de la fraise en X, Y et Z valent respectivement 310, 220 et 160 mm. Les dimensions finales du canal 'procédé' ne devront donc pas excéder ces valeurs sachant que celles de la maquette ont été fixées à 320 x 190 x 20 mm.

Enfin, des logiciels de conception (CAO) et de fabrication assistée par ordinateur (FAO) permettent de programmer les géométries à graver et de communiquer avec la fraiseuse (cf. figure II.10).

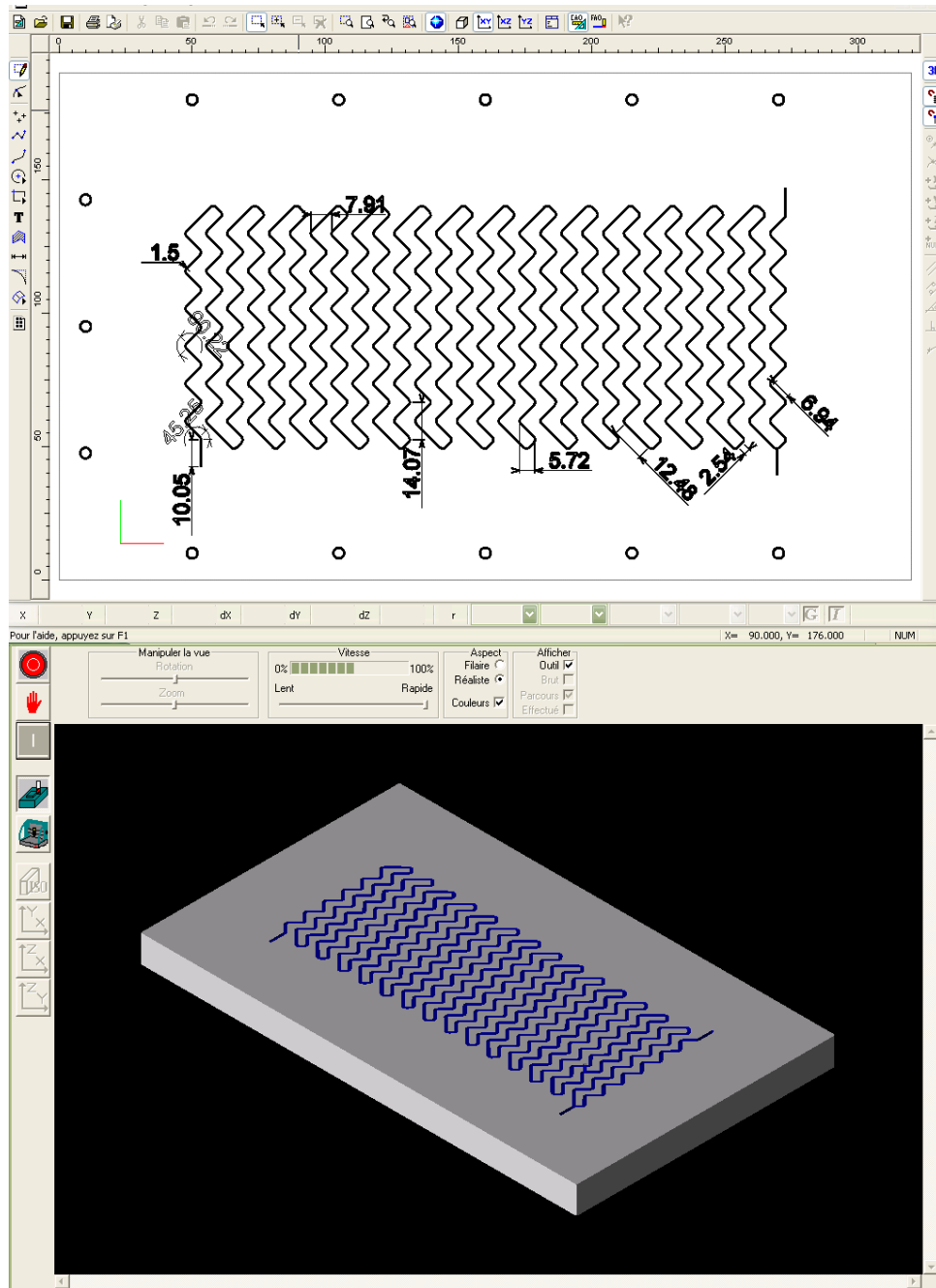


Figure II.10 : Logiciel de Cao (en haut) et de FAO (en bas).

Le protocole d'usinage pour chaque plaque 'procédé' est le suivant :

- Conception assistée par ordinateur de la géométrie du canal réactionnel ;
- Transfert du fichier vers le logiciel de FAO. A ce stade, un certain nombre de données de conception sont requises : la nature du matériau (plexiglas et métal tendre dans le cas de la plaque 'utilité') ; la vitesse de rotation de la fraise (respectivement $9500 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$ et $13500 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$), sa vitesse d'avance (respectivement $20 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ et $1 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$), sa vitesse de descente (respectivement $8 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ et $1 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$) et la profondeur de l'usinage ;
- Fixation de la plaque vierge sur le plateau de la fraiseuse. Des repères permettent de la centrer et de l'aligner par rapport aux axes (X,Y) ;

- Repérage du zéro par rapport au capteur outil. Cette étape doit être réitérée à chaque usinage car le zéro n'est jamais mémorisé notamment celui par rapport à l'axe Z (axe vertical), c'est lui qui déterminera la profondeur effective du canal ;
- Préchauffe de la fraise, elle est mise en rotation dans le vide durant 10 minutes ;
- Fraisage de la plaque (environ 15 min) ;
- Nettoyage des canaux à l'air comprimé puis à l'eau.

L'étape la plus longue correspond au dessin des géométries sur le logiciel de CAO. Après cela, une trentaine de minutes sont nécessaires pour réaliser chaque maquette.

II.4.2.2 Tests d'étanchéité

L'étanchéité aux raccords est assurée par du ruban téflon placé autour de la visserie Swagelok. Aucune fuite n'est constatée.

Le point critique concerne l'étanchéité entre les canaux le long de la plaque de fermeture. Plusieurs modes de serrage ont été testés : à l'aide de vis, avec des étaux ou encore des contreplaques d'acier incrustées dans la partie centrale des plaques de plexiglas afin de créer des points de pression sur le pourtour et au centre de la maquette. Dès la mise en eau, des fuites sur le pourtour de la maquette sont apparues. Dans un premier temps les plaques ont alors été surfacées avec une tête à aléser munie d'un outil à surfacer en acier rapide, sans succès. Seule l'utilisation d'une fraise diamant permet d'affiner suffisamment le surfacage. Les tests d'étanchéité ont permis de valider ou non les réglages de la machine-outil. Il y a 3 niveaux de validation :

- Tout d'abord, la maquette est mise en eau et l'on vérifie l'absence de fuites sur les bords des plaques ;
- Ensuite, un colorant est injecté à l'entrée de la maquette. Si des fuites entre les canaux existent, elles sont facilement visualisées (cf. figure II.11) ;

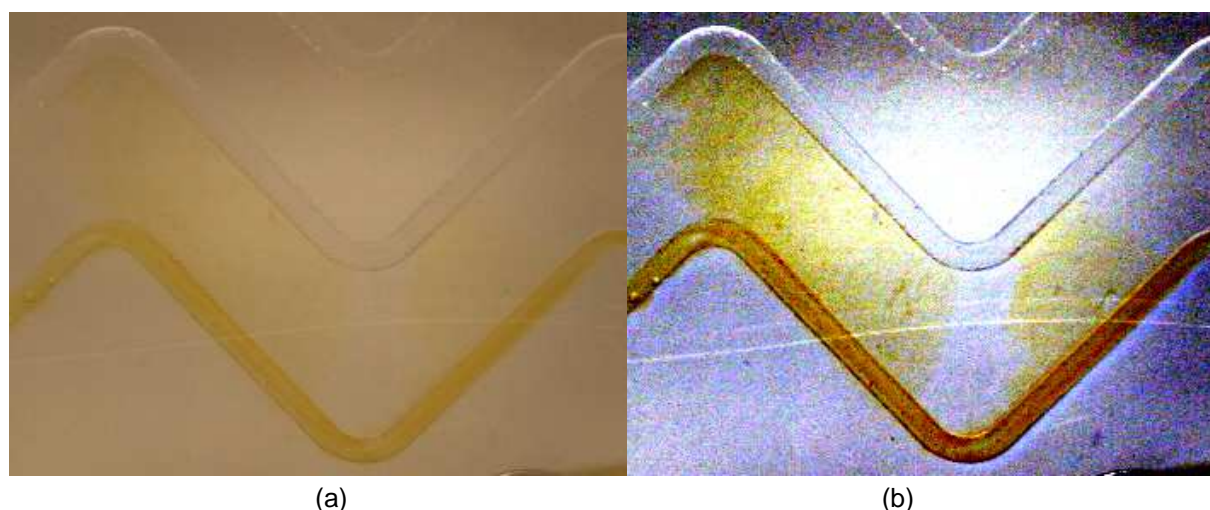


Figure II.11 : Photographie d'une maquette qui n'est pas étanche avant traitement de l'image (a) et après (b).

- Enfin pour s'assurer de l'absence de passages préférentiels, la quantité de colorant injecté est mesurée à l'entrée puis à la sortie de la maquette. La forme du pic de sortie et le bilan matière garantissent l'étanchéité des canaux (cf. figure II.12).

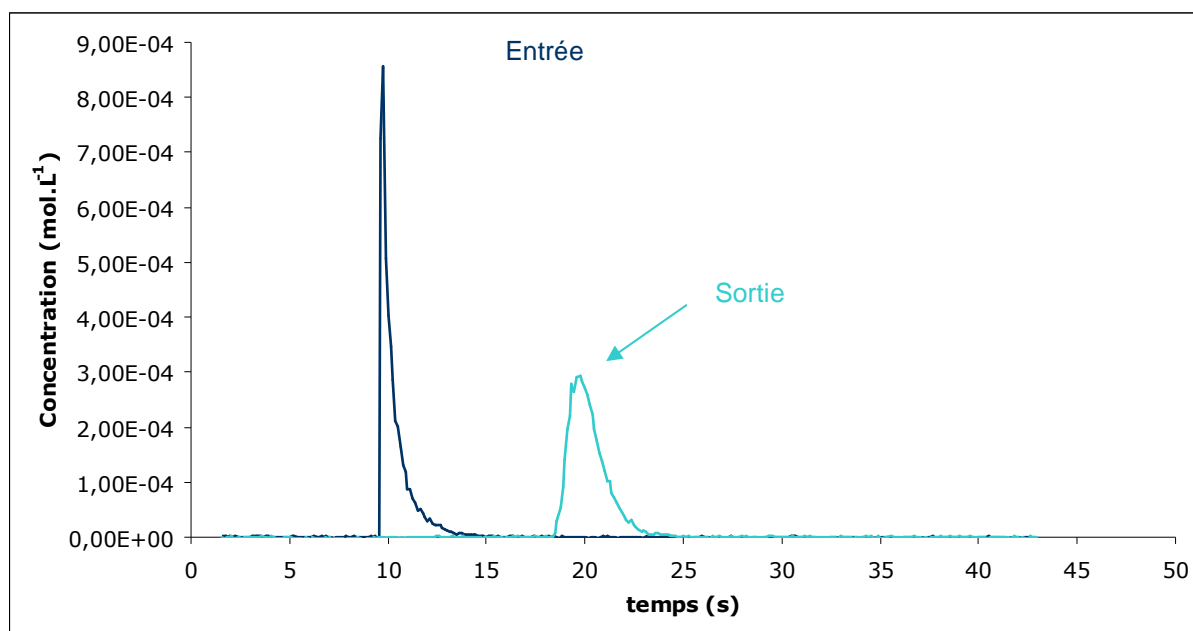


Figure II.12 : Evolution du pic de colorant entre l'entrée et la sortie de la maquette.

Dans ce cas, la différence entre les aires sous les courbes vaut -1% et il n'y a qu'un seul pic en sortie. Ces deux points confirment l'étanchéité de la maquette.

II.4.2.3 Assemblage

La plaque 'utilité', en aluminium, est incompatible avec l'iode utilisé pour les caractérisations du mélange et du micromélange. Les plaques ne doivent donc pas être assemblées définitivement et il faut pouvoir retirer la plaque 'utilité' après les expériences de thermique. Les maquettes sont donc assemblées par serrage. Cette méthode permet en outre de n'usiner qu'une seule plaque 'utilité' qui servira pour toutes les maquettes. Elle présente un inconvénient majeur : les plaques doivent être parfaitement lisses et planes au préalable pour garantir l'étanchéité. Les fournisseurs en PMMA ne garantissent jamais l'état de surface de leurs plaques car il dépend du transport et du mode de stockage (température, humidité, position verticale ou horizontale,...). Il faut donc surfacer chaque plaque avant et après leur usinage. Cette étape nécessite l'emploi d'une fraise diamant montée sur une fraiseuse plus imposante et plus lourde que le CharlyRobot afin d'éviter toutes vibrations durant l'opération. Le protocole d'assemblage est le suivant :

- Découpe aux dimensions des plaques de plexiglas et de la plaque d'aluminium (320 x 190 x 20 mm) ;
- Surfacement de chaque plaque à la fraise diamant, les vitesses de rotation et d'avance ont été fixées à $630 \text{ tr}\cdot\text{min}^{-1}$ et $12 \text{ mm}\cdot\text{min}^{-1}$ après de nombreux tests d'étanchéité ;
- Fraisage des canaux sur les plaques 'procédé' et 'utilité' selon le protocole précédent ;

- Surfaçage des plaques gravées avec les mêmes caractéristiques que le précédent afin d'éliminer les imperfections dues au fraisage ;
- Perçage des plaques au niveau des vis de serrage, des entrées et sorties des fluides 'utilité' et 'procédé', de l'injection du réactif secondaire et des prises de température. Dans le cas idéal, cette étape aurait dû être réalisée avant le surfaçage. Cependant, les trous augmentaient l'effet de vibration de la plaque lors du passage de la fraise diamant, altérant son état de surface ;
- Taraudage des entrées, sorties, injections et prises de température pour raccorder les maquettes au banc d'essai ;
- Assemblage par serrage, 16 vis sont placées à la périphérie des maquettes (cf. figure II.13). Afin de ne pas voiler les plaques, le serrage est réalisé en deux temps à l'aide d'un tournevis dynamométrique, d'abord à $1.75 \text{ N}\cdot\text{m}^{-1}$ puis à $3 \text{ N}\cdot\text{m}^{-1}$. De même, une procédure de serrage a été mise au point (cf. figure II.13).

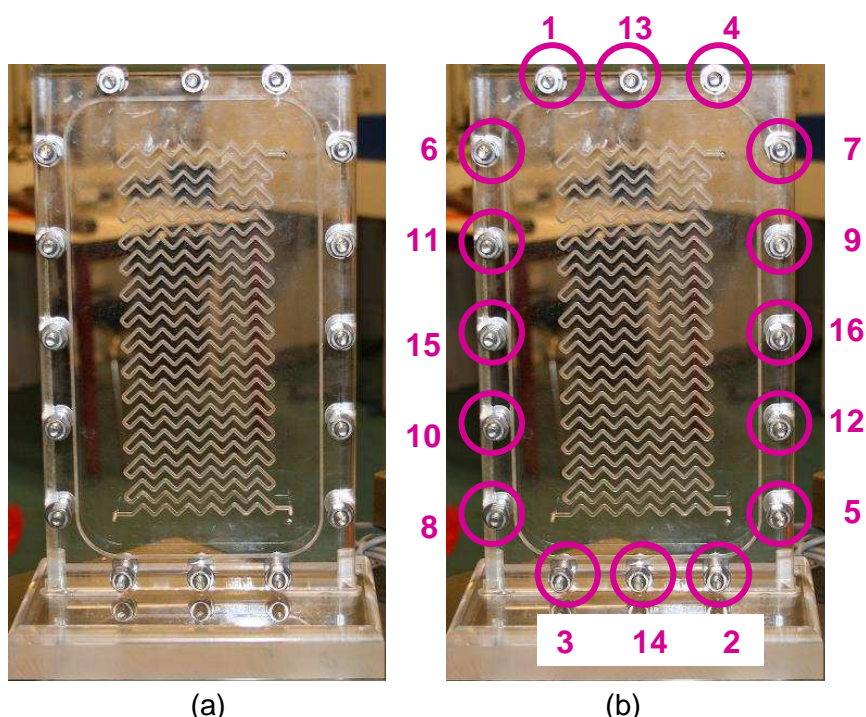


Figure II.13 : (a) Photographie d'une des maquettes sans la plaque d'aluminium (b) Schéma de serrage (dans l'ordre de 1 à 16).

II.4.3 CHOIX DES GEOMETRIES

L'intérêt de la mise en œuvre et du mode d'assemblage des maquettes, développés dans les paragraphes précédents, réside dans la diminution des délais de fabrication. Cette réactivité est un atout pour optimiser les campagnes d'expérimentations et pour adapter les géométries vis-à-vis des contraintes technologiques, notamment celles du CEA/LTH qui dessine les mêmes géométries mais dans des maquettes en cuivre et acier inoxydable (cf. projet RAPIC). Grâce à la simplicité et la rapidité de fabrication et d'assemblage, plusieurs géométries ont pu être testées. La plaque 'utilité' restant identique, il suffit d'échanger la plaque 'procédé' pour les caractérisations thermiques. L'étude bibliographique du chapitre I a montré que seuls cinq paramètres géométriques affectaient les écoulements secondaires

dans les canaux structurés : le rayon de courbure, R_c , l'angle des coudes, θ , le facteur de forme, b/a avec a la hauteur du canal et b leur largeur, le pas des ondulations et enfin leur amplitude. La longueur droite entre chaque coude, L_d , suffit à traduire les variations des deux derniers paramètres, simplifiant donc le système géométrique (cf. figure II.14).

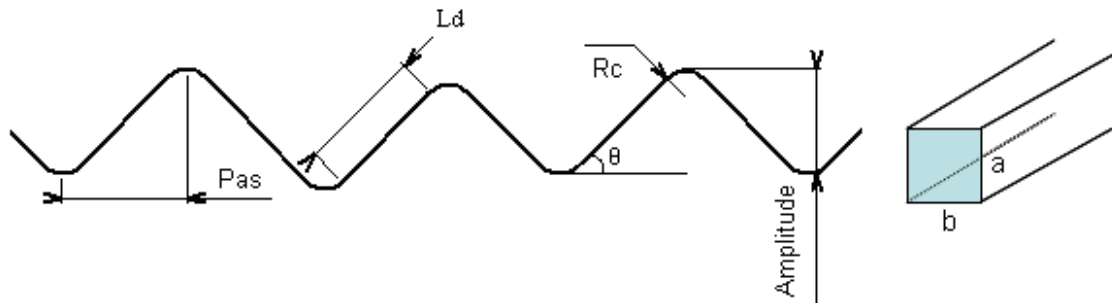


Figure II.14 : Paramètres géométriques caractérisant le canal ondulé.

Le tableau suivant récapitule les données géométriques pour chaque maquette qui sont dessinées sur la figure II.15. L'annexe A (dépliant) est un rappel de chaque géométrie à l'échelle 1 et des notations correspondantes. On pourra s'y référer au cours de la lecture du manuscrit.

Maquette n°	R_c (mm)	L_d (mm)	θ	b/a (mm)
a	-	90	-	2/2
b	1,5	6,94	75°	2/2
c	1,5	6,94	45°	2/2
d	1,5	20,28	45°	2/2
e	4	20,28	45°	2/2
f	4	20,28	45°	2/4
g	4	20,28	45°	4/4

Tableau II.9 : Récapitulatif des paramètres géométriques et des notations pour les maquettes.

Un seul paramètre varie d'une maquette à l'autre afin de bien dissocier l'influence de chacun lors des caractérisations. La maquette, référencée 'a' correspond aux longueurs droites avec retournements.

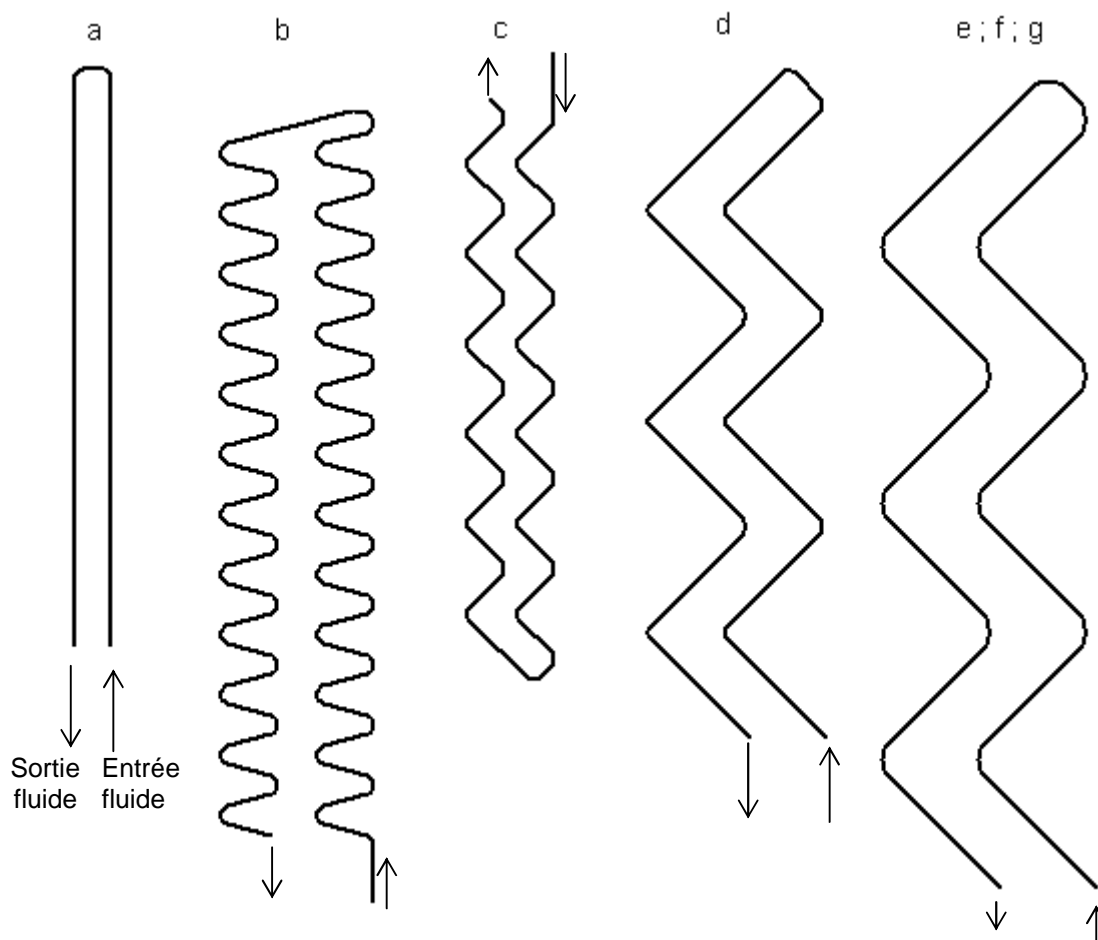


Figure II.15 : Récapitulatif des géométries à l'échelle 1.

II.4.4 BANC D'ESSAI

Le banc d'essai est conçu pour la caractérisation des maquettes (cf. figures II.16, II.17 et II.18). Elles sont facilement raccordées aux trois lignes d'alimentation à disposition : l'eau refroidie (du réseau) et deux fluides procédés. Chaque ligne est équipée d'un débitmètre massique, d'un capteur de pression piézorésistif associé à un disque de rupture, d'un clapet anti-retour et de sondes de température (Pt100). Les lignes 'procédé' sont alimentées par deux pompes à engrenage Verder munies de têtes de pompe à entraînement magnétique et peuvent être thermostatées. Le bac de sortie est placé sur pesons pour les bilans matières. Après avoir raccordé les maquettes aux alimentations, elles sont connectées à un capteur de pression différentielle, à deux spectrophotomètres et à une dizaine de sondes de température (thermocouples). Les sondes Pt100 sont plus précises et ne nécessitent pas d'étalonnage. Cependant, il faut plonger au moins 2 cm de sonde dans le milieu pour bénéficier d'une mesure de température valide. Les canaux des maquettes ne faisant que 2 ou 4 mm de profondeur au maximum, les thermocouples se sont donc naturellement imposés pour les mesure de température le long du canal 'procédé'. Le tableau II.10 donne les gammes de précisions de chaque instrument ainsi que leur plage de mesure.

Capteur	Plage de mesure	Précision
Débitmètres massiques Micro Motion (procédé)	0 à 50 kg·s ⁻¹	±0,1%
Débitmètre massique Micro Motion (utilité)	0 à 500 kg·s ⁻¹	±0,1%
Balances	0 à 15 kg	10 ⁻³ kg
Tête de pompe 1	0,05 à 5 L·h ⁻¹	-
Tête de pompe 2	0,1 à 10 L·h ⁻¹	-
Pt100	0 à 100°C	±0,2°C
Thermocouples (Couple J classe 1)	-40 à 375°C	±1,5°C
Pression différentielle	0 à 5 bars	±5%
Pression	0 à 16 bars	±1%
Spectrophotomètre	200 à 1100 nm	±5%

Tableau II.10 : Caractéristiques de l'instrumentation du banc d'essai.

Chaque donnée est mesurée en ligne et transmise à un logiciel d'acquisition dont l'interface est représentée sur la figure II.17. Elles sont ensuite utilisées pour l'exploitation sous Excel.



Figure II.16 : Photographie du banc d'essai.

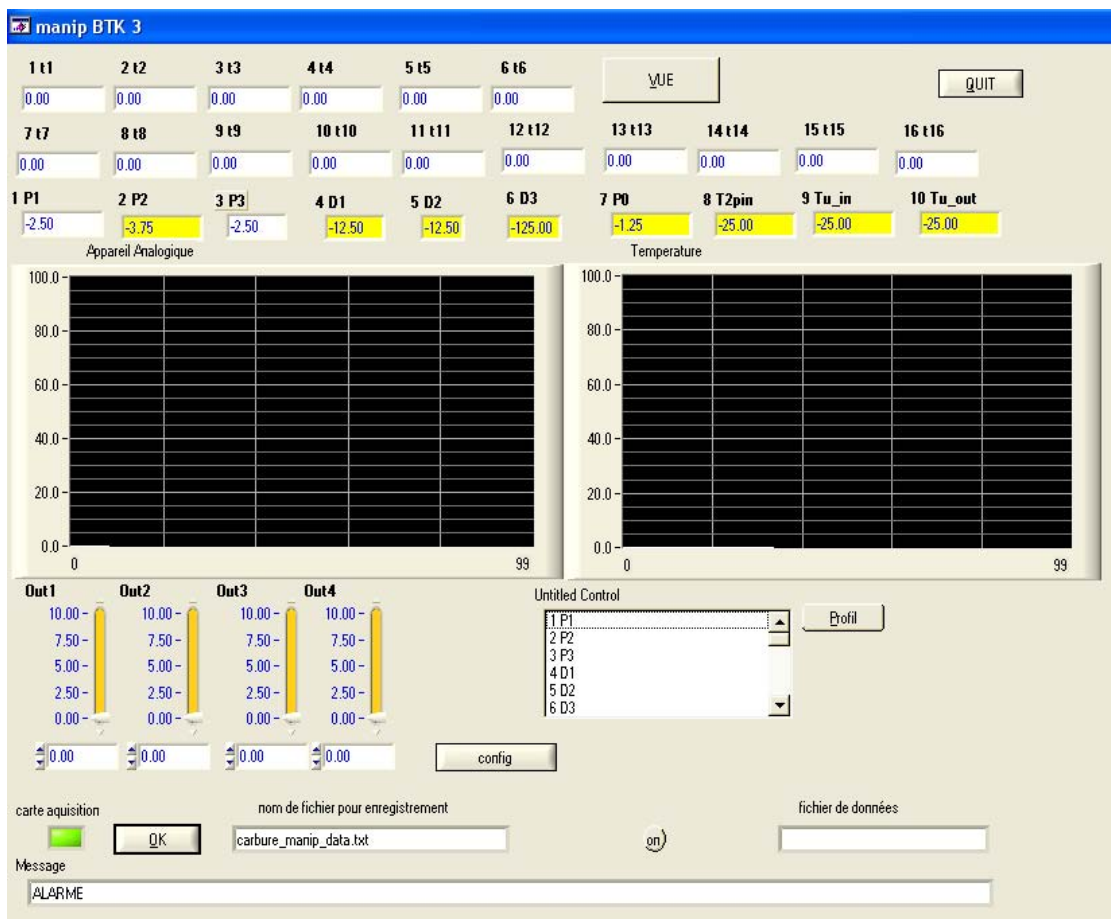


Figure II.17 : Interface du logiciel d'acquisition DasyLab.

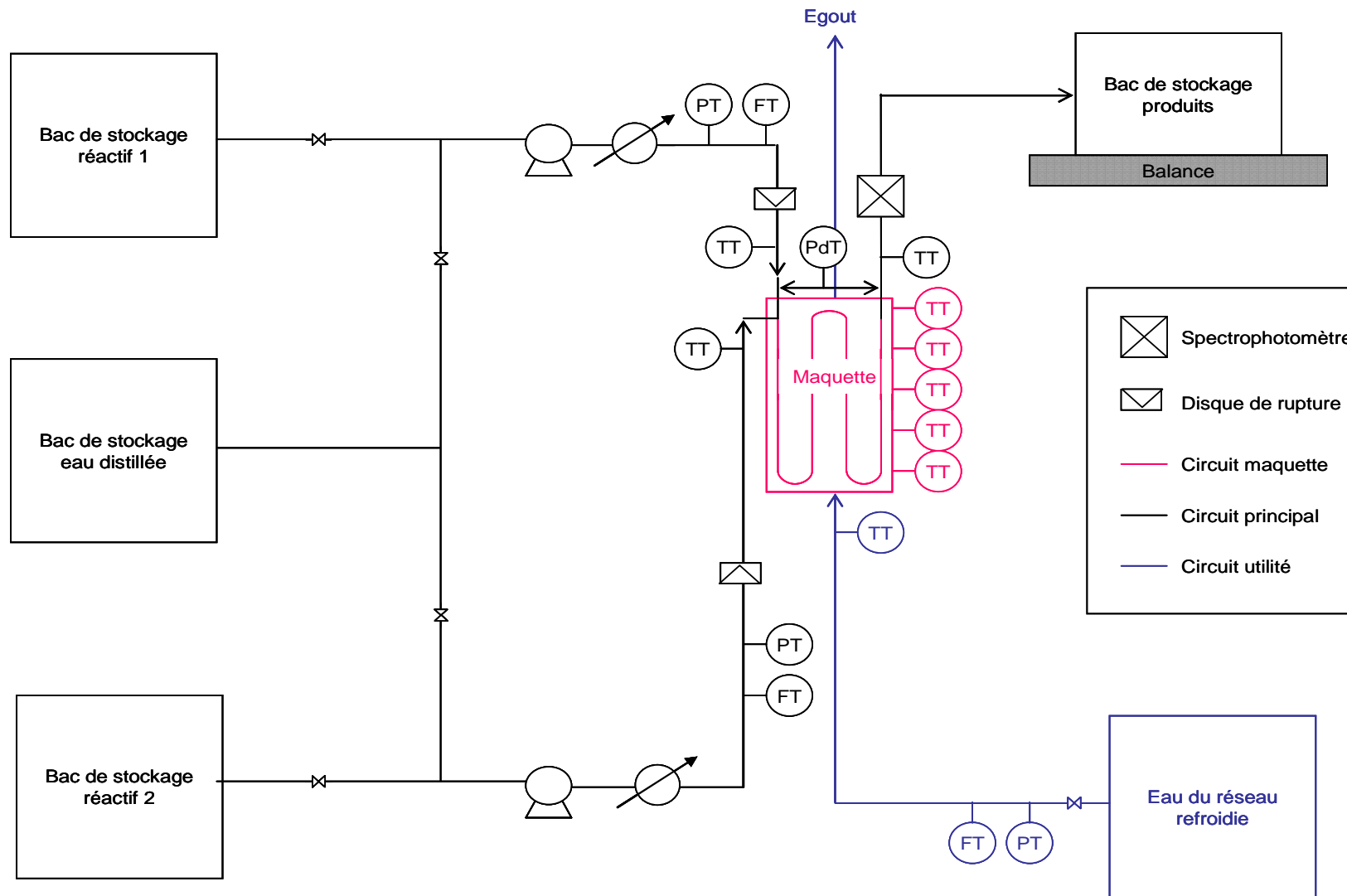


Figure II.18 : Schéma de procédé du banc d'essai

II.5 SIMULATION NUMERIQUE

En parallèle des expérimentations, nous avons cherché à évaluer l'impact de la géométrie des canaux sur l'allure des écoulements générés. Pour cela, nous avons fait appel à la simulation numérique des écoulements permettant de prédire les profils de vitesse et les recirculations grâce à un code classique de mécanique des fluides (CFD), Fluent.

II.5.1 MAILLAGE

Afin de diminuer les temps de calculs, seuls quelques coudes ont été maillés (cf. figure II.19). Les plans apparaissant en vert ont été définis pour visualiser l'évolution des écoulements dans les sections perpendiculaires au flux principal le long d'un coude et d'une longueur droite.

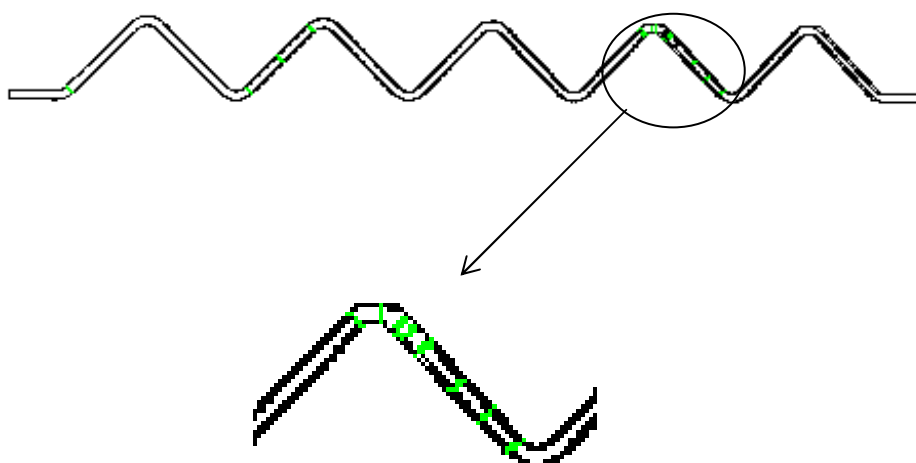


Figure II.19 : Géométrie maillée pour les simulations numériques.

La zone de visualisation des profils de vitesse et du comportement des écoulements correspond à la portion du canal ondulé qui a été zoomée sur la figure II.19. Afin de s'assurer de l'établissement de l'écoulement, nous avons comparé les profils de vitesse dans deux sections identiques, l'une située en amont du troisième coude, l'autre en amont du septième coude. La figure II.20 représente l'évolution du profil de vitesse en fonction de la position dans les deux sections considérées.

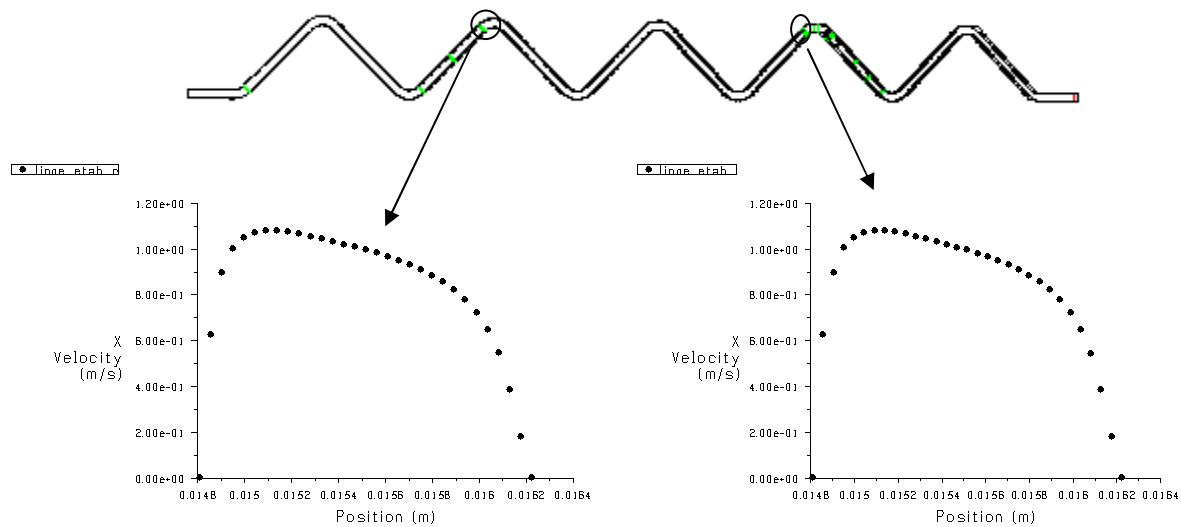


Figure II.20 : Comparaison des profils de vitesse dans deux sections de position différente.

Les deux graphes montrent que les profils de vitesse sont parfaitement identiques que l'on soit dans le 3^{ème} ou le 7^{ème} coude. Ce résultat permet donc de conclure quant à l'établissement rapide du régime. Le choix de la zone de visualisation des profils de vitesse et des écoulements (partie zoomée sur la figure II.19) est donc justifié et représentatif du comportement de l'écoulement quelque soit la position dans le canal ondulé. Il n'était donc pas nécessaire de modéliser dans sa totalité le canal ondulé et le fait de ne mailler que quelques coudes permet de réduire considérablement les temps de calcul.

En outre, afin d'optimiser le temps de calcul par rapport à la précision des résultats souhaitée, l'influence du maillage sur la prédiction des pertes de charge est prise en compte. La condition limite fixée correspond à une pression en sortie de canal nulle ($P_{\text{outlet}}=0$). Ainsi, la mesure de la pression en entrée de canal, P_{inlet} , donne directement une information sur la perte de charge dans le canal.

$$\Delta P = P_{\text{inlet}} - P_{\text{outlet}} = P_{\text{inlet}}$$

Le tableau II.11 donne le détail des maillages testés et la figure II.21 montre l'évolution de la pression obtenue pour une géométrie donnée en fonction du nombre de mailles.

N_{maille} longueurs droites	N_{maille} hauteur du canal	N_{maille} largeur du canal	N_{maille} coude	N_{maille} total
5	5	5	5	4 750
15	15	15	15	93 150
30	30	30	30	678 600
50	30	30	75	1 083 600
50	45	45	75	2 895 750

Tableau II.11 : Détails du maillage

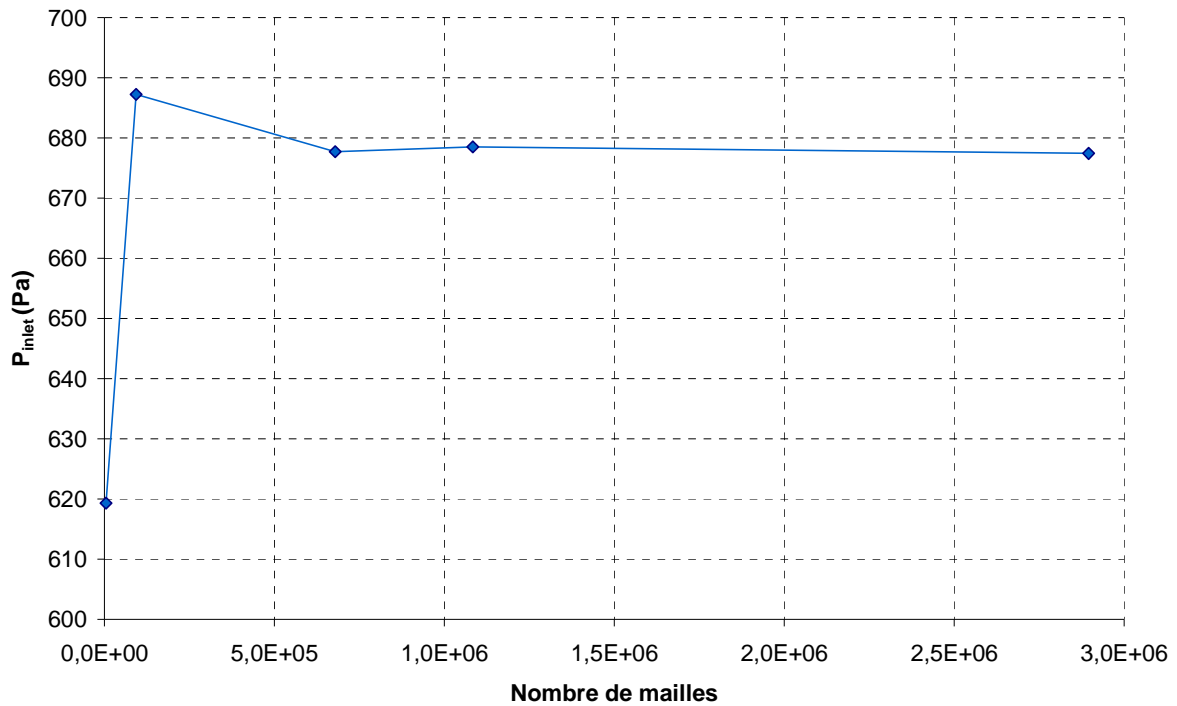


Figure II.21 : Exemple d'évolution de la pression calculée en fonction de la taille du maillage.

A partir de $6 \cdot 10^5$ mailles, la pression n'évolue plus sur le graphe II.21 comme pour les autres cas traités. Ce maillage est donc suffisant pour modéliser la géométrie. Il est représenté sur la figure II.22.

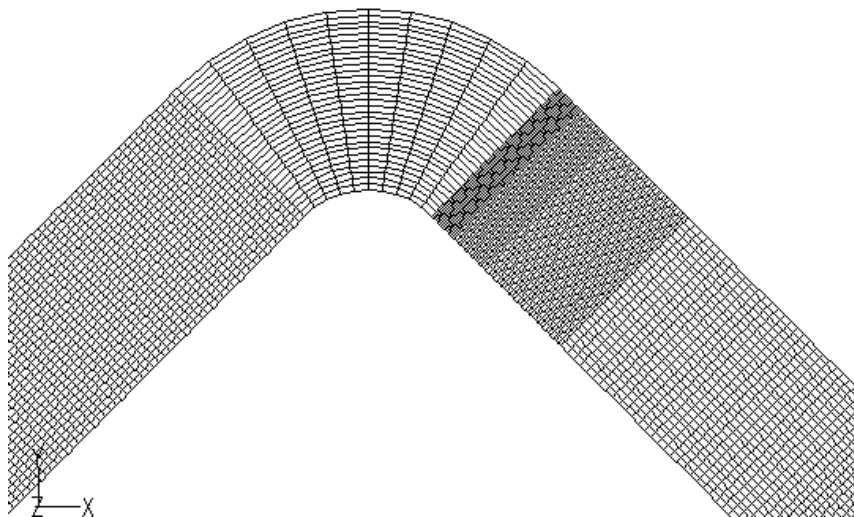


Figure II.22 : Détail du maillage dans un coude. La longueur droite qui suit le coude est dissociée en plusieurs éléments afin d'obtenir des profils d'écoulement détaillés.

Le maillage étant suffisant d'après le graphe II.21 et les phénomènes que l'on souhaite observer étant situé sur toute la section de passage de l'écoulement, nous n'avons pas jugé nécessaire de raffiner le maillage près des parois.

II.5.2 MODELE

Le fluide modélisé est monophasique (eau). Les géométries sont relativement simples et les calculs numériques concernent l'évolution de la perte de charge et de la température. Le modèle k-epsilon a déjà été validé pour ce type de géométries et de conditions expérimentales (*Shah et al., 2000 ; Tochon et al., 2000 ; Bigoin et al., 2000*). Il ne nous est donc pas apparu pertinent, ici, de tester l'influence de différents modèles sur les résultats. Le code de calcul permet de résoudre les équations de conservation de la masse (II-9) et de la quantité de mouvement (II-10).

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla(\rho \cdot \vec{v}) = 0 \quad (\text{II-9})$$

$$\frac{\partial(\rho \cdot \vec{v})}{\partial t} + \nabla(\rho \cdot \vec{v}\vec{v}) = -\nabla P + \nabla\left(\frac{\tau}{\rho}\right) + \rho \cdot g \quad (\text{II-10})$$

Pour modéliser la turbulence, c'est finalement le modèle semi-empirique RNG k- ϵ (Renormalization Group Theory) qui a été utilisé. Il résout les équations de transport de l'énergie cinétique turbulente et de son taux de dissipation visqueuse. En faisant apparaître des termes supplémentaires par rapport au modèle k- ϵ classique, il prend en compte toutes les échelles pour la diffusion de la turbulence.

$$\frac{\partial(\rho \cdot k)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho \cdot k \cdot v_i)}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\alpha_k \cdot \mu_{\text{eff}} \cdot \frac{\partial k}{\partial x_j} \right) + P_k - \rho \cdot \epsilon \quad (\text{II-11})$$

$$\frac{\partial(\rho \cdot \epsilon)}{\partial t} + \frac{\partial(\rho \cdot \epsilon \cdot v_i)}{\partial x_i} = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\alpha_\epsilon \cdot \mu_{\text{eff}} \cdot \frac{\partial \epsilon}{\partial x_j} \right) + C_1 \frac{\epsilon}{k} P_k - C_2 \cdot \rho \cdot \frac{\epsilon^2}{k} - R_\epsilon \quad (\text{II-12})$$

P_k représente la production d'énergie cinétique turbulente et α l'inverse du nombre de Prandtl effectif pour k et ϵ . C_1 et C_2 sont des constantes qui, par défaut, valent respectivement 1,42 et 1,68.

La théorie RNG fait intervenir une équation différentielle pour la viscosité turbulente :

$$\frac{\partial \left(\frac{\rho^2 \cdot k}{\sqrt{\epsilon \cdot \mu}} \right)}{\partial t} = 1,72 \frac{\hat{\nu}}{\sqrt{\hat{\nu}^3 - 1 + C_\mu}} \cdot \partial \hat{\nu} \quad (\text{II-13})$$

Avec

$$\hat{\nu} = \mu_{\text{eff}} / \mu \quad \text{et} \quad C_\mu = 100$$

Pour les valeurs de Reynolds très importantes, l'équation (II-13) donne :

$$\mu_T = \rho \cdot C_\mu \cdot \frac{k^2}{\varepsilon}$$

Avec $C_\mu=0,085$. On retrouve bien la valeur empirique du modèle k- ε standard, $C_\mu=0,09$. Enfin, la principale nouveauté de la résolution RNG réside dans le terme R_ε , défini par :

$$R_\varepsilon = \frac{C_\mu \cdot \rho \cdot \eta^3 (1 - \eta/\eta_0) \cdot \varepsilon^2}{1 + \beta \cdot \eta^3} \cdot \frac{1}{k} \quad (\text{II-14})$$

Avec : $\eta \equiv S \cdot k/\varepsilon$, $\eta_0 = 4,38$, $\beta = 0,012$

Les modélisations permettent également d'évaluer le transfert de chaleur, il faut donc résoudre l'équation de conservation de l'énergie :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho \cdot E) + \nabla \cdot (\vec{v}(\rho \cdot E + P)) = \nabla \cdot \left(k_{\text{eff}} \nabla T - \sum_j h_j \cdot \vec{J}_j + (\vec{T}_{\text{eff}} \cdot \vec{v}) \right) \quad (\text{II-15})$$

De plus, afin de traiter plus précisément les zones proches des parois, le modèle RNG-k- ε a été complété par le modèle « Enhanced Wall Treatment ».

Les conditions aux limites définies pour chaque modélisation sont la pression nulle en sortie, la température de paroi à 286 K pour la face supérieure (en aluminium), le flux thermique nul sur les autres faces, la vitesse du fluide à l'entrée variant entre 0,1 et 1 m·s⁻¹ et sa température à 348 K. L'énergie cinétique turbulente et la dissipation visqueuse sont respectivement fixées à 1·10⁻⁴ m²·s⁻² et 1·10⁻⁴ m²·s⁻³. Les schémas de discrétisation utilisés sont un premier ordre pour l'énergie cinétique turbulente et la dissipation visqueuse, un second ordre pour la pression et de type QUICK pour la quantité de mouvement et l'énergie.

La validation de ce modèle est abordée dans le chapitre III, paragraphe III.2.1.2.c.

II.6 SYNTHÈSE

La caractérisation de l'échangeur/réacteur SiC et l'outil de prédiction élémentaire, dit thermo-hydraulique global, ont démontré l'intérêt potentiel de la structuration bidimensionnelle du chemin réactionnel. Outre le gain conséquent en compacité de l'appareil global, les performances thermo-hydrauliques sont telles que deux réactions exothermiques ont été mises en œuvre avec succès. Cependant, afin de mener une démarche d'optimisation de la géométrie des canaux et d'extrapolation vers les échelles industrielles, il faut découpler la structuration 2D du matériau et affiner les lois thermo-hydrauliques. Pour cela, deux projets supportent les travaux de thèse. Le premier, EXTRAPOLIS, se concentre sur l'extrapolation à l'échelle industrielle (production x 100 voire x 1000) tandis que le second, RAPIC, consiste en l'optimisation du couple performances/prix pour répondre aux impératifs de coûts du marché.

Afin de comprendre et de caractériser expérimentalement les phénomènes régissant les écoulements et les performances dans les canaux structurés, des maquettes que l'on

dénommera dans la suite Deanhex, ont été mises en œuvre. Nous nous proposons d'étudier 7 géométries différentes. Elles sont définies par leur rayon de courbure, l'angle des coudes, la longueur droite entre deux coudes et le facteur de forme. Les caractérisations de chacune d'entre elles doivent servir à la définition des lois qui seront utilisées pour optimiser la géométrie et envisager l'extrapolation. En parallèle, des modélisations numériques sont réalisées à l'aide d'un code commercial (Fluent). Elles sont menées dans une démarche d'aide à la compréhension des phénomènes grâce notamment à la visualisation des écoulements.

Les chapitres suivants concernent la mise en œuvre et les résultats des caractérisations expérimentales pour chaque maquette.

CHAPITRE III CARACTERISATION DE L'HYDRO-DYNAMIQUE

Ce premier chapitre de résultats concerne la caractérisation de la distribution du temps de séjour (DTS) et des pertes de charge dans chaque maquette. Les dispositifs expérimentaux seront détaillés dans un premier temps et notamment le choix de la méthode de détection pour les DTS. Les résultats pour chaque géométrie et leur exploitation font l'objet des paragraphes suivants, l'un d'entre eux étant tout particulièrement dédié à la modélisation de la DTS. Enfin, l'évolution des performances en fonction des caractéristiques géométriques sera présentée. L'aspect extrapolation n'est pas traité ici car il fait l'objet du chapitre VI. Aussi, les résultats concernant les maquettes 'f' et 'g' (augmentation de la taille des canaux) ne seront pas présentés dans ce chapitre.

III.1 DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET METHODES

La mesure des pertes de charge est réalisée par un capteur de pression différentielle classique et n'appelle pas de commentaire particulier. La détermination de la DTS est, quant à elle, plus délicate. Plusieurs méthodes existent et le choix de l'une d'entre elles repose notamment sur les données caractéristiques du fonctionnement du réacteur que sont les vitesses débitantes et le temps de séjour. En outre, l'échelle millimétrique des canaux impose des volumes de fluides relativement faibles (quelques dizaines de millilitres). Par conséquent, l'instrumentation associée aux dispositifs expérimentaux doit être adaptée pour ne pas créer de volumes morts trop importants, de l'ordre du volume de fluide, et avoir des temps de réponse suffisamment courts.

III.1.1 CHOIX ET PRINCIPE DE LA METHODE POUR LA DETERMINATION DES DTS

Les éléments de fluide circulant dans la maquette n'empruntent pas tous le même chemin, ils ne possèdent donc pas le même temps de passage. Leur distribution au sein du courant de sortie est appelée distribution du temps de séjour, E (s^{-1}). L'analyse de la DTS fournit de précieuses informations sur le comportement de l'écoulement. Elle permet entre autres de diagnostiquer les courts-circuits, les volumes morts ou les zones stagnantes (cf. figure III.1).

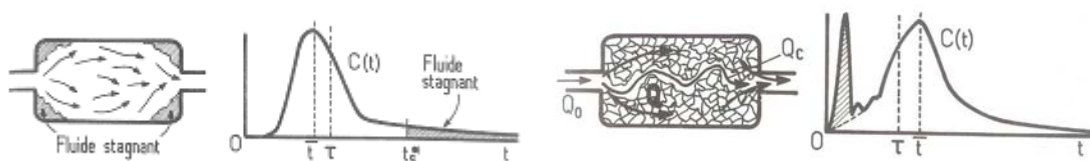


Figure III.1 : Diagnostics de mauvais fonctionnements grâce à la DTS. A gauche : zones stagnantes, à droite : court-circuit.

Lors de la mise en œuvre de réactions, afin d'éviter l'accumulation de réactifs dans certaines zones, la DTS doit se rapprocher de celle d'un réacteur piston. Ceci signifie que tous les éléments de fluide possèdent le même temps de séjour dans l'appareil. Ce type d'écoulement est caractérisé par une très bonne homogénéisation radiale de la quantité de mouvement, des températures et des concentrations favorisant les transferts et le mélange. Pour déterminer expérimentalement la DTS d'un appareil, plusieurs méthodes existent. Elles font toutes appel à un traceur qui doit posséder les mêmes propriétés que l'écoulement (densité, viscosité,...). Leur différence provient de la nature de ce dernier et donc du moyen de détection utilisé (Euzen et al., 1983). Le tableau III.1 fournit un aperçu des méthodes, avec leurs principaux avantages et inconvénients.

Méthode	Caractéristiques du traceur	Avantages	Inconvénients
Conductimétrie	Sel (KCl, NaCl,...)	Facilité de mise en œuvre ; Coût faible	Temps de réponse du conductimètre
Radioactivité	Radioactif	Rapidité de la réponse ; Bonne précision	Capteurs coûteux ; Danger lié aux produits (contamination et irradiation)
Réfractométrie	Indice de réfraction différent de celui de l'écoulement principal	Réponse rapide ; Facilité de mise en œuvre	Dérivation du débit de sortie
Traçage thermique	Impulsion ou perturbation thermique	Coût faible	Méthode intrusive (sonde de température) ; Signal perturbé par les phénomènes de conduction, de pertes thermiques,...
Spectro-photométrie	Colorant	Réponse rapide ; méthode non intrusive	Matériel de détection coûteux et fragile.

Tableau III.1 : Principales méthodes de caractérisation de la DTS.

Bien que très efficace, la méthode par traçage radioactif présente de trop grands risques de contamination et d'irradiation et nécessite une habilitation spéciale pour manipuler les produits. Le traçage thermique, quant à lui, est très facile à mettre en œuvre et peu cher. Cependant, les incertitudes de mesure sont trop élevées. En effet, les pertes thermiques et le phénomène de conduction peuvent fausser la mesure de température de l'écoulement en sortie du réacteur, et ce, d'autant plus que ce dernier est long. La mesure de DTS par réfractométrie présente un inconvénient majeur en phase liquide. Pour ne pas perturber l'écoulement, le traceur doit posséder des caractéristiques proches de celle de l'écoulement principal, qui dans notre cas est de l'eau. Il est difficile de trouver un fluide proche de l'eau en densité et viscosité et dont l'indice de réfraction est suffisamment différent pour que les mesures soient précises. Cette technique est en fait plus souvent utilisée lorsque l'on travaille avec des milieux organiques dans lesquels les autres traçages sont plus difficiles à mettre en œuvre.

Les méthodes spectrophotométriques ou conductimétriques sont en fait les plus courantes. Elles sont simples à mettre en œuvre et non intrusives. Les traceurs sont des produits inoffensifs (colorant ou sel) et peu coûteux. Les conditions opératoires qui sont présentées

dans les paragraphes suivants nous fournissons une indication par rapport au temps de passage du traceur injecté. Le temps de réponse d'un conductimètre est légèrement supérieur à celui d'un spectrophotomètre. De plus, ce dernier peut également être utilisé pour le suivi de réactions, lorsque les produits ou réactifs mis en jeu absorbent la lumière à des longueurs d'onde différentes. Enfin, les cellules de mesure placées en ligne sont normalisées : ce sont des raccords en croix Swagelok dont les dimensions correspondent à celles de la visserie du banc d'essai (cf. figure III.2).



Figure III.2 : Cellule spectro-photométrique.

Pour toutes ces raisons, c'est la méthode spectrophotométrique qui a été retenue pour caractériser les DTS. Le traceur doit donc être un colorant dont la longueur d'onde d'absorbance est évidemment différente de celle de l'eau. Sa courbe caractéristique, $A_\lambda=f(C)$ doit en outre être linéaire dans une gamme de concentrations suffisamment large afin d'avoir une bonne précision de mesure (cf. figure III.3).

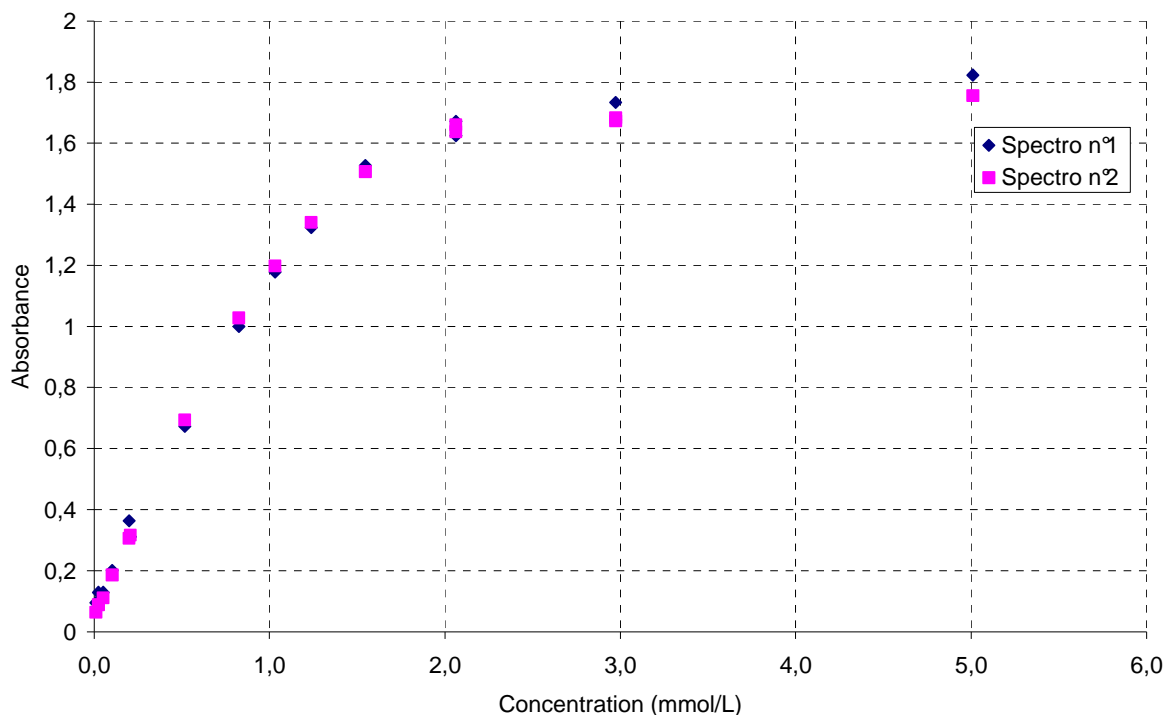


Figure III.3 : Etalonnage des spectrophotomètres pour le permanganate de potassium.

Deux colorants ont été testés, le bleu de bromothymol (BBT) en milieu basique et le permanganate de potassium (KMnO_4). Leurs longueurs d'absorption sont respectivement 615 nm et 525 nm. Les résultats des expériences menées avec le BBT montrent que l'écart sur le bilan matière entre l'entrée et la sortie vaut 20% au minimum. Une partie du BBT injecté n'est donc pas détectée en sortie.

En fait, le BBT est un indicateur coloré. Pour obtenir sa couleur bleue, il doit se trouver en solution basique, c'est le cas de la solution injectée. Le spectrophotomètre a donc été étalonné dans ces conditions. Or le flux principal dans lequel est injecté le traceur est de l'eau distillée ($\text{pH} \approx 7$). Le pH de la traînée du pic va donc diminuer par dilution jusqu'à ce que le BBT change de couleur et que sa longueur d'onde d'absorption ne corresponde plus à celle de l'étalonnage du spectrophotomètre. Dans ces conditions, il n'est donc plus détectable. La solution consiste à travailler soit avec un écoulement principal basique, complexifiant la mise en œuvre expérimentale, soit avec un autre indicateur coloré. Nous avons ainsi opté pour le KMnO_4 qui ne requiert que le réétalonnage du spectrophotomètre.

Finalement, même si elle est plus coûteuse que la méthode conductimétrique, la technique faisant appel à un spectrophotomètre en ligne pour caractériser les DTS a été préférée dans notre étude. Sa précision de mesure est meilleure, la mise en œuvre est simple, les cellules de mesure sont directement adaptées aux raccords du banc d'essai et l'appareil pourra être réutilisé pour d'autres applications (suivi de réaction, de niveau de mélange,...). Le permanganate de potassium est le colorant le mieux adapté aux conditions opératoires, l'absorbance est linéaire dans une gamme de concentration allant de $0,01 \cdot 10^{-3}$ à $1,25 \cdot 10^{-3} \text{ mol} \cdot \text{m}^{-3}$ (cf. figure III.3).

Le paragraphe suivant décrit plus en détail l'instrumentation et le logiciel d'acquisition.

III.1.2 DESCRIPTION DES DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX

Ce paragraphe fournit les données caractéristiques de l'instrumentation utilisée pour l'évaluation des pertes de charge ou des DTS ainsi que les protocoles opératoires.

III.1.2.1 Pertes de charge

Les pertes de charge sont mesurées par un capteur de pression différentielle (Rosemount) dont la plage de mesure varie de 0 à 5 bars pour une précision de $\pm 5\%$. Les prises de pression sont situées à l'entrée et à la sortie des maquettes. Les capteurs de pression piézométriques qui équipent le banc d'essai ne servent que d'indicateurs pour les lignes d'alimentation et ne sont pas suffisamment précis car trop éloignés pour caractériser les maquettes.

Deux fluides de travail ont été utilisés, l'eau distillée et le glycérol à 67% massique. Le fluide circule dans la ligne d'alimentation thermostatée et des sondes de température sont placées en entrée et en sortie des maquettes. Il est en effet nécessaire de connaître la température du fluide pour évaluer ensuite ses propriétés physiques (densité, viscosité). La viscosité de la solution de glycérol préparée a été mesurée par rhéométrie pour des températures variant de 25 à 28°C. Le rhéomètre AR 2000 (TA Instruments) mesure la contrainte de cisaillement (Pa) à température fixe en fonction du taux de cisaillement (s^{-1}). La pente de la droite

obtenue correspond à la viscosité du fluide. La figure III.4 donne les valeurs obtenues pour le glycérol à 67% massique. La rampe de vitesse appliquée varie de $0,1$ à 500 s^{-1} . Pour s'assurer du comportement newtonien du fluide, lors de la mesure de la viscosité, la rampe est ensuite inversée (de 500 à $0,1 \text{ s}^{-1}$) pour le même échantillon. Si les valeurs de la contrainte de cisaillement sont identiques, le fluide peut être considéré comme newtonien. Dans notre cas, la différence vaut au maximum 5%. Cette limite reste acceptable.

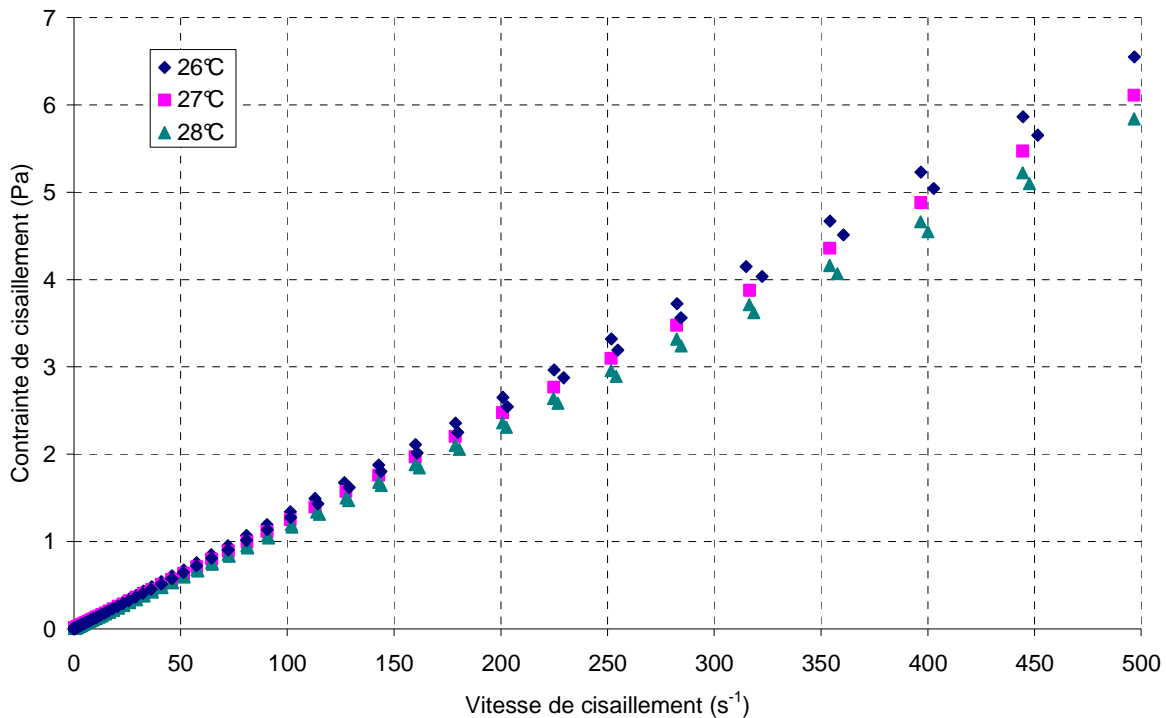


Figure III.4 : Evolution de la contrainte de cisaillement en fonction de la vitesse de cisaillement pour trois températures.

Le tableau III.2 compare les valeurs de viscosité mesurées avec celles de la littérature (Segur & Oberstar, 1951)

Température (°C)	Viscosité mesurée (cP)	Viscosité théorique (cP)
20	-	17.7
26	13.2	
27	12.3	
28	11.6	
30	-	11.3

Tableau III.2 : Comparaison des viscosités du glycérol à 67% massique entre les mesures par rhéométrie et les données de la littérature.

La masse volumique de la solution de glycérol à 67% m., à 25°C , vaut $1170 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$. Ces données sont nécessaires pour calculer le coefficient de Darcy à partir de la mesure des pertes de charge en fonction du nombre de Reynolds (cf. chapitre I).

$$\Delta P = \Lambda \cdot \frac{L}{d_h} \cdot \frac{1}{2} \rho \cdot v^2 \quad (\text{III-1})$$

Après avoir mesuré les constantes physico-chimiques des fluides de travail, le protocole opératoire suivant est mis en œuvre :

- 1) Mise en route du thermostat ;
- 2) Alimentation en eau ou en glycérol de la maquette ;
- 3) Purge du capteur de pression pour chasser l'air de la maquette et des prises de pression ;
- 4) Arrêt du débit ;
- 5) Vérification du zéro du capteur ;
- 6) Remise en marche de la pompe d'alimentation ;
- 7) Mesure de la température et de la différence de pression pour chaque débit.

III.1.2.2 Distribution du temps de séjour

a. *Instrumentation et protocole opératoire*

Le suivi de l'évolution de concentration du traceur entre l'entrée et la sortie de la maquette permet de déterminer la DTS. L'injection du colorant est sous la forme d'une impulsion instantanée (pulse de Dirac). Cependant, elle est réalisée manuellement à l'aide d'une seringue et le Dirac parfait est donc impossible à obtenir expérimentalement. Pour plus de précision, un spectrophotomètre est placé immédiatement en aval de l'injection et nous fournit la concentration exacte injectée et la forme du pic d'entrée. Le dispositif expérimental est composé de deux spectrophotomètres, de deux cellules de mesure (cf. figure III.2) et des fibres optiques les reliant.

La qualité de l'injection est déterminante quant à la précision de la mesure de concentration. Le réacteur idéal de type piston se comporte comme un retard pur, toutes les molécules ont exactement le même temps de séjour. Le pic de concentration en sortie de réacteur sera donc identique à celui d'entrée mais décalé d'un temps t correspondant au temps de séjour. Dans le cas des réacteurs réels, le pic d'entrée subit des transformations dues aux profils de vitesse, à la turbulence, à la diffusion moléculaire ou encore à la dispersion axiale le long du réacteur, s'étalant au fur et à mesure de sa progression (cf. figure III.5).

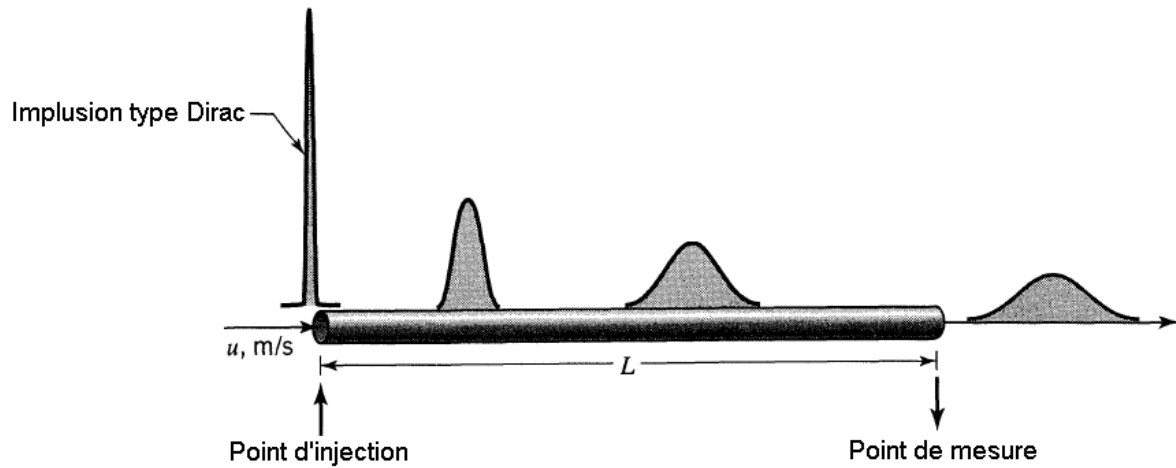


Figure III.5 : Evolution du pic de traceur le long d'un réacteur tubulaire classique (Levenspiel, 1999).

L'impulsion d'entrée correspond au cas idéal. En pratique, elle n'est jamais parfaitement symétrique et il existe toujours une légère traînée. Sur la figure III.6, la courbe rose représente un Dirac parfait tandis que la courbe bleue, parfaitement superposée au début, correspond à une injection manuelle. Une traînée non négligeable (partie grisée) apparaît. Moins son volume sera important, meilleure sera la précision de la mesure en sortie. En effet, la concentration de la traînée étant faible en entrée de réacteur, avec l'étalement de la distribution, elle risque de passer en dessous du seuil de détection ($1 \cdot 10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$) en sortie et de créer un écart conséquent sur le bilan matière.

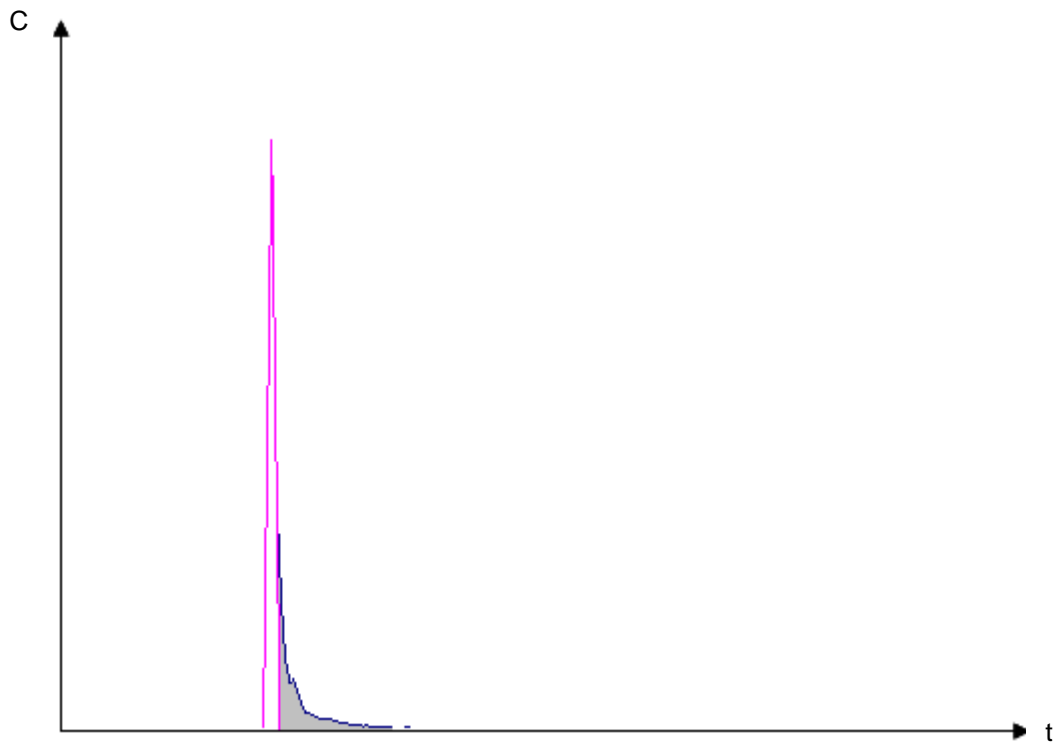


Figure III.6 : Comparaison entre un Dirac parfait (courbe rose) et une injection manuelle (courbe bleue superposée).

Afin de reproduire au mieux un Dirac, le traceur coloré est injecté avec une seringue en amont de la maquette, la 1^{ère} cellule de détection étant placée entre l'injection et l'entrée du canal à caractériser. Pour la détermination des DTS, le traceur coloré qui a été choisi est le permanganate de potassium dont la courbe d'étalonnage pour les deux spectrophotomètres a déjà été représentée sur la figure III.3. Deux conditions sont à respecter lors de l'injection :

- La concentration maximale détectée en entrée ne doit pas excéder $1,23 \cdot 10^{-3} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$, qui correspond à la borne supérieure de la partie linéaire de la courbe d'étalonnage mais doit s'en approcher au maximum pour plus de précision ;
- La quantité de traceur ne doit pas être trop importante pour l'injecter rapidement et obtenir un pic le plus étroit possible.

Le meilleur compromis entre concentration et volume injecté a été déterminé après plusieurs tests et correspond à $3 \cdot 10^{-2} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ pour 0,1 mL. Le dispositif d'injection est constitué d'un raccord en T, muni d'un septum étanche dans lequel la seringue est piquée lors de l'injection (cf. figure III.7).

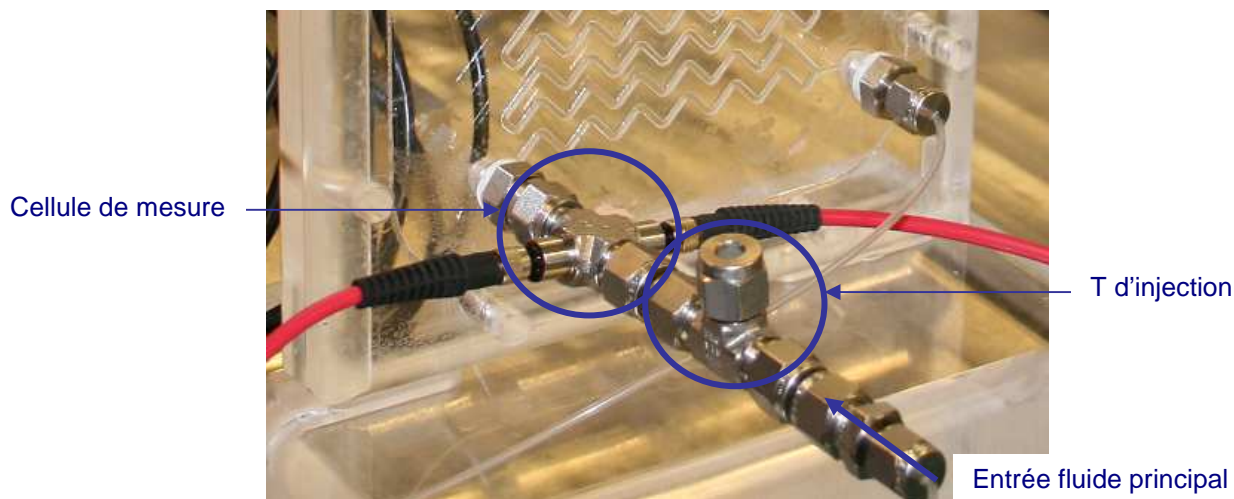


Figure III.7 : Photographie de l'injection et de la cellule de mesure en entrée de la maquette.

De par sa géométrie, le T possède une zone stagnante du côté du septum qui peut engendrer une traînée supplémentaire sur le pic d'entrée. Pour la minimiser, l'aiguille de la seringue a été coupée de telle sorte que l'injection se fasse au centre de l'écoulement.

Le volume de la visserie a été réduit au maximum. Il est piloté par la cellule de mesure dont les dimensions sont fixées et données dans le tableau III.3. Il est identique pour toutes les maquettes et vaut 1 mL.

« In-line flow cells » - Avantes	
Pas de vis	1/4"
Dimensions	55 x 45 x 15 mm
Chemin optique	5 mm
Etendue d'échelle de la longueur d'onde	200 – 2500 nm
Source lumineuse « AvaLight DHc »	
Etendue d'échelle de la longueur d'onde	200 – 2500 nm
Durée de vie	1000 h
Dimensions	175 x 110 x 44 mm
Spectromètre « AvaSpec-2048 »	
Etendue d'échelle de la longueur d'onde	200 – 1100 nm
Vitesse d'échantillonnage	1,11 ms/scan
Vitesse de transfert des données	1,8 ms/scan
Dimensions	175 x 110 x 44 mm

Tableau III.3 : Données caractéristiques du matériel de spectrophotométrie.

Le tableau fournit également les caractéristiques du spectromètre et de la source lumineuse. Celle-ci est composée d'une source deutérium et d'une source halogène afin de couvrir toute la gamme UV/Visible/NIR. L'ensemble du dispositif expérimental est représenté sur la figure III.8.

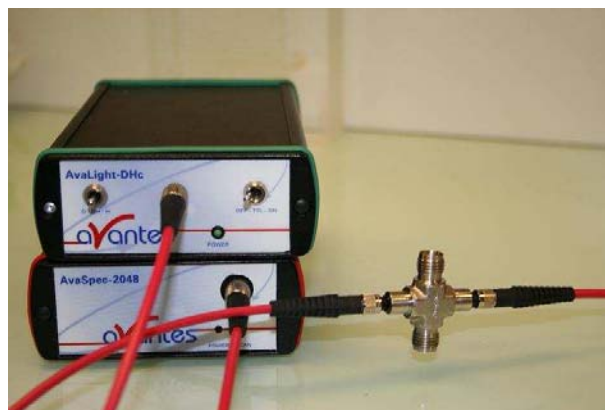
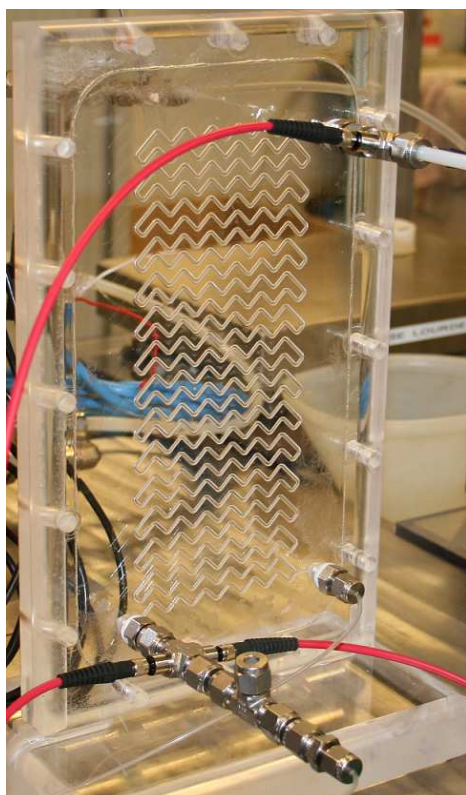


Figure III.8 : Dispositif expérimental pour la caractérisation des DTS.

Le logiciel d'acquisition permet de suivre l'évolution de l'absorbance, et donc de la concentration en traceur, au cours du temps au niveau des deux cellules de mesure. Celles-ci sont munies d'un collimateur. Le faisceau se propage ensuite le long de la fibre optique jusqu'au spectromètre. Deux paramètres sont importants à ce niveau, il s'agit du temps d'intégration (« Integration Time ») et de la moyenne (« Average »). Le premier correspond

au temps d'exposition du détecteur pour un balayage, le second au nombre de balayages requis pour établir un spectre. Les valeurs de ces deux facteurs influent sur le temps d'acquisition des données et la précision de la mesure et dépendent entre autres du fluide de travail, de la source lumineuse et de l'état de surface des cellules de mesure. Pour les caractérisations dans les maquettes Deanhex, le temps d'intégration a été fixé à 6 ms pour une moyenne de 2. Après avoir effectué ces réglages, le protocole opératoire est le suivant :

- 1) Préparation de la solution de permanganate de potassium à $3 \cdot 10^{-2} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$;
- 2) Alimentation de la maquette en eau distillée au débit de travail souhaité ;
- 3) Allumage du spectromètre (détecteur uniquement) ;
- 4) Sélection de la longueur d'onde de travail (525 nm pour le KMnO_4) ;
- 5) Blanc sur la luminosité ambiante. Cette étape permet de retirer du signal mesuré le spectre de la luminosité de la pièce de travail ;
- 6) Allumage de la source lumineuse ;
- 7) Attente pendant la chauffe (15 min) ;
- 8) Mesure du spectre de référence de l'eau distillée ;
- 9) Démarrage de l'acquisition ;
- 10) Injection de 0,1 mL de traceur ;
- 11) Enregistrement des données et transfert vers le logiciel de traitement (Excel).

b. Traitement et modélisation

La DTS correspond à la réponse, en sortie de maquette, à une injection de traceur effectuée à l'entrée. Expérimentalement, le traceur est injecté avec une seringue afin de reproduire au mieux une impulsion de type Dirac. Cependant, la forme du pic d'injection et le mélange du colorant avec l'écoulement principal dépendent fortement du régime hydrodynamique au niveau de l'injection et il est difficile de reproduire manuellement la même injection pour chaque débit. La figure III.9 en est une illustration.

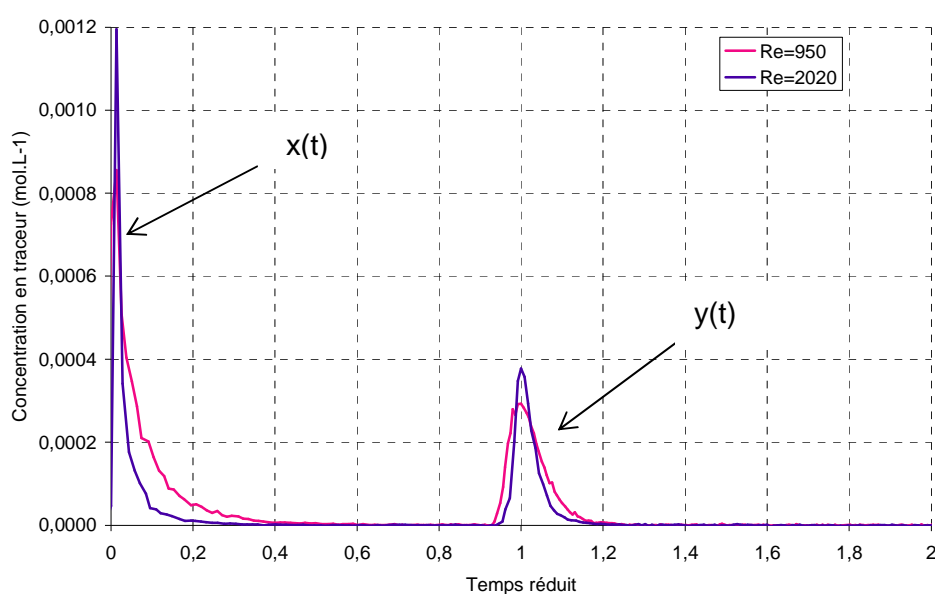


Figure III.9 : Comparaison des pics d'entrée et de sortie pour deux débits différents (10 et 22 $\text{kg} \cdot \text{h}^{-1}$) dans la maquette 'f'.

Malgré deux injections réalisées en suivant le même protocole, le pic d'entrée diffère largement selon le débit. Il est beaucoup plus large à faible débit. L'injection est en effet réalisée juste en amont de la maquette dans un raccord en « T » relié à la canalisation d'alimentation circulaire de diamètre constant et égal à 4 mm (cf. figure III.7). Ainsi lorsque le débit varie les conditions hydrodynamiques dans la canalisation et dans le « T » changent, modifiant la vitesse d'homogénéisation du colorant avec le flux principal. La comparaison immédiate des résultats expérimentaux n'est donc pas pertinente puisque la forme et la hauteur des signaux de sortie dépendent directement des conditions d'entrée. L'opération mathématique qui permet de déterminer la DTS, $E(t)$, à partir des signaux d'entrée, $x(t)$ et de sortie, $y(t)$ est la déconvolution (Villermaux, 1982).

Par définition, $E(t) \cdot dt$ correspond à la fraction du débit de sortie ayant séjourné dans le réacteur un temps compris entre t et $t+dt$. En réponse à une injection-impulsion de type Dirac, à l'instant t , le bilan matière s'écrit :

$$n_0 \cdot E(t) \cdot dt = F \cdot C(t) \cdot dt$$

F , C et n_0 étant respectivement le débit volumique, la concentration en traceur en sortie de réacteur et le nombre de moles initial. De ce bilan matière entre l'entrée et la sortie du réacteur, on déduit en régime permanent que :

$$n_0 = \int_0^{\infty} F \cdot C(t) \cdot dt$$

Ainsi :

$$E(t) = \frac{C(t)}{\int_0^{\infty} C(t) \cdot dt} \quad (\text{III-2})$$

Dans le cas d'une injection manuelle, la condition du Dirac n'est plus respectée. Dans ce cas, la réponse, $y(t)$, à un signal d'entrée en concentration, $x(t)$, s'écrit :

$$y(t_f) = \int_0^{t_f} x(t) \cdot E(t_f - t) \cdot dt \quad (\text{III-3})$$

y est le produit de convolution de x par E . En introduisant les transformées de Laplace de x , y et E , soit $X(s)$, $Y(s)$ et $G(s)$ telles que :

$$L(f) = F(s) = \int_0^{\infty} \exp(-st) \cdot f(t) \cdot dt$$

L'équation (III-3) s'écrit :

$$Y(s) = X(s) \cdot G(s) \quad (\text{III-4})$$

$G(s)$ est la fonction de transfert du réacteur. Sa détermination est réalisée par l'opération de déconvolution à partir des courbes expérimentales. Le logiciel utilisé est DTS PRO 4.2

développé par Progepi (2000). Les calculs sont menés dans le domaine de Laplace puis les résultats sont retranscrits dans le domaine réel afin d'obtenir la DTS.

Pour déterminer la fonction de transfert, le modèle utilisé peut être celui des bacs en cascade parfaitement agités. Le canal caractérisé sera représenté par une série de N bacs mélangés dont le volume total est égal à celui du canal. N=1 correspond au réacteur agité continu alors que lorsque N tend vers l'infini, l'écoulement se rapproche du comportement piston, les courbes de DTS sont alors semblables à des gaussiennes symétriques (cf. figure III.10).

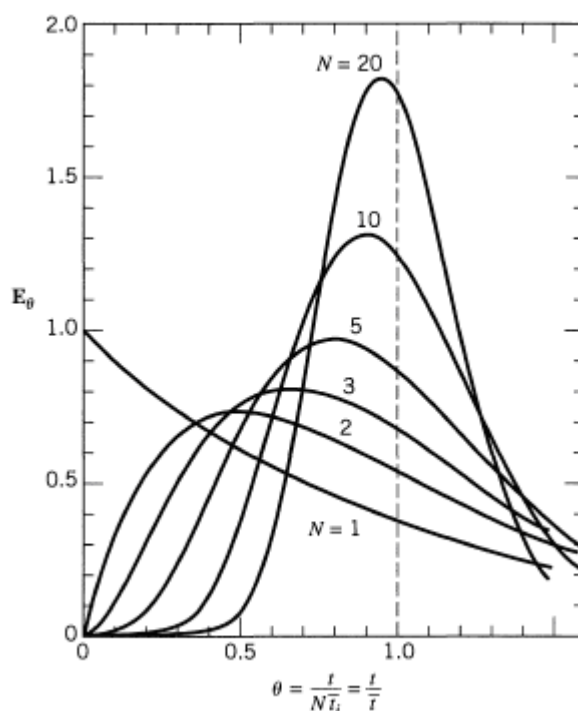


Figure III.10 : Courbes de DTS pour le modèle des bacs en cascade parfaitement agités (Levenspiel, 1999).

La fonction de transfert pour ce modèle s'écrit :

$$G(s) = \left(1 + \frac{\bar{t} \cdot s}{N} \right)^{-N} \quad (\text{III-5})$$

Le logiciel DTS PRO permet donc de déterminer le nombre N de bacs pour lequel la différence de la moyenne des carrés entre la courbe de réponse calculée et la réponse expérimentale sera minimale.

La figure III.11 est un exemple de comparaison entre la courbe expérimentale et les résultats de la modélisation.

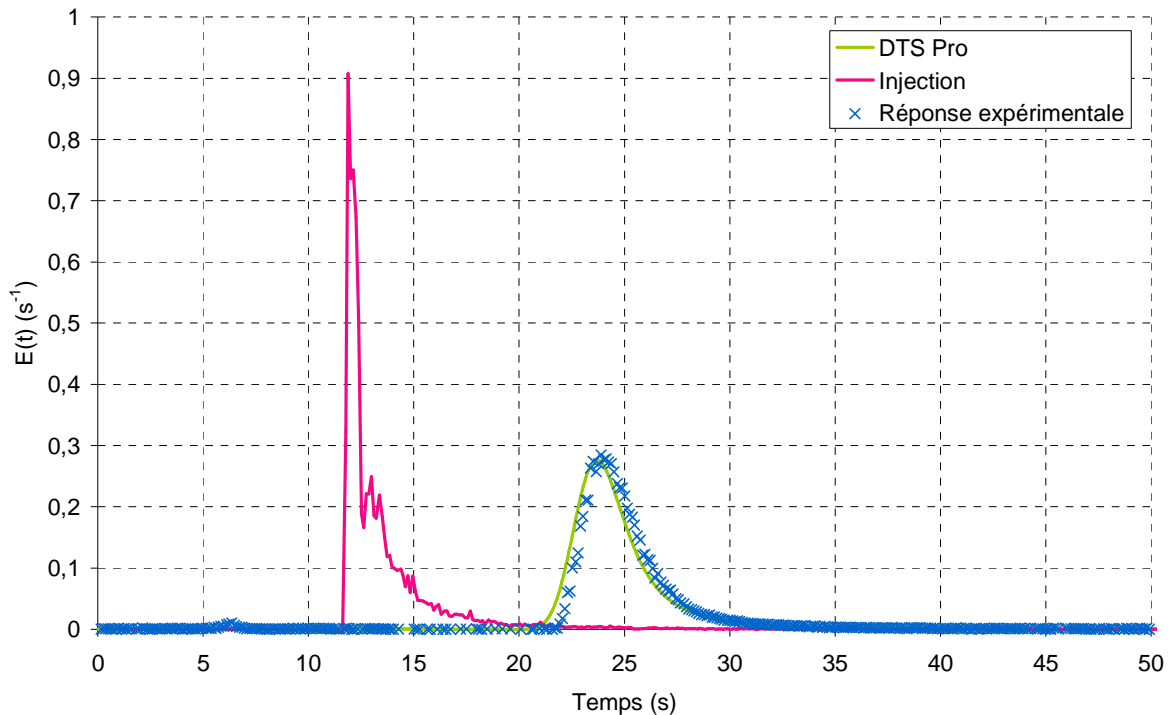


Figure III.11 : Comparaison entre la réponse expérimentale et la DTS modélisée par DTS Pro.
Tests effectués dans la maquette 'e' à $5 \text{ kg}\cdot\text{h}^{-1}$ soit $Re=700$.

Le nombre de bacs équivalent au canal de chaque maquette pour la gamme de Reynolds fournie dans le paragraphe de résultats (III.2.2.2) est donc estimé à l'aide de DTS PRO.

III.2 RESULTATS EXPERIMENTAUX

Ce paragraphe présente les résultats expérimentaux de perte de charge et de DTS. L'influence de chaque paramètre géométrique est discutée. Les pertes de charge ont également été déterminées numériquement, notamment pour valider le modèle utilisé et pour dissocier l'influence des coudes de celle des longueurs droites. Enfin, l'exploitation des DTS passe par un travail de modélisation de l'écoulement qui clôture ce paragraphe.

III.2.1 PERTES DE CHARGE

Les pertes de charge ont été mesurées pour de l'eau et du glycérol à 67% massique. Les conditions opératoires sont présentées dans le paragraphe suivant. Les résultats expérimentaux ont permis d'établir l'influence des paramètres géométriques et de valider le modèle numérique utilisé pour les simulations.

III.2.1.1 Conditions opératoires

Afin de connaître exactement leurs propriétés physiques, les fluides sont thermostatés à 25°C. En augmentant la viscosité, le glycérol permet de travailler dans des gammes de Reynolds beaucoup plus basses que celles de l'eau. Le tableau III.4 récapitule les conditions

opératoires en termes de débits, de propriétés physico-chimiques et de nombre de Reynolds équivalent.

	\dot{m} (kg·h ⁻¹)	T (°C)	μ (mPa·s)	ρ (kg·m ⁻³)	Re
Maquettes a, b, c, d, e (eau)	de 1 à 18	25	0,91	997	de 170 à 2200
Maquettes a, b, c, d, e (glycérol)	de 2 à 20	25	13,0	1170	de 20 à 240

Tableau III.4 : Conditions opératoires pour les mesures de pertes de charge.

III.2.1.2 Résultats expérimentaux

a. Comparaison théorie/expérience pour un tube droit

Les résultats expérimentaux sont donnés en pertes de charge linéiques, $\Delta P/L$ en fonction du débit ou de la vitesse et en version adimensionnelle, i.e. en coefficient de Darcy, Λ , en fonction du nombre de Reynolds. L'expression du Darcy est la suivante :

$$\Lambda = \frac{\Delta P}{1/2 \cdot \rho \cdot v^2} \cdot \frac{d_h}{L} \quad \text{(III-6)}$$

Les corrélations de la littérature en régime laminaire et turbulent sont données dans le chapitre I (I-12 et I-29), leurs expressions finales pour un tube de section rectangulaire ($b/a=0,5$) parfaitement lisse sont :

$$\Lambda = 0,98 \cdot \frac{64}{Re} \text{ (laminaire) et } \Lambda = \frac{0,3164}{Re^{0,25}} \text{ (turbulent)}$$

La figure III.9 les compare avec le coefficient de Darcy expérimental établi dans une conduite de section rectangulaire en acier inoxydable qui présente un rétrécissement en entrée et un élargissement en sortie. Pour tenir compte de ces accidents de parcours, un coefficient de Darcy équivalent est défini tel que :

$$\Lambda_{eq} = \Lambda + \Lambda_s$$

Avec Λ_s , le coefficient de frottement relatif aux singularités : $\Lambda_s = K \cdot \frac{d_h}{L}$.

Si A_1 et A_2 correspondent respectivement aux sections de passage de la canalisation la plus large et de celle plus étroite, le coefficient K vaut :

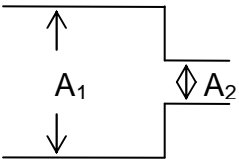
	K (élargissement)	K (rétrécissement)
	$\left(1 - \frac{A_2}{A_1}\right)^2$	$\left(\frac{1}{C} - 1\right)^2$ $C = 0,63 + 0,37 \cdot \left(\frac{A_2}{A_1}\right)^3$
Dispositif expérimental	0,132	0,143

Tableau III.5 : Expressions littérales et numériques du coefficient de singularité, K.

Sur la figure III.12, la courbe représentant le coefficient de Darcy expérimental est corrigé de la part due aux singularités, soit un élargissement plus un rétrécissement :

$$\Lambda = \Lambda_{\text{exp}} - (K_{\text{rétréc}} + K_{\text{élarg}}) \cdot \frac{d_h}{L} = \Lambda_{\text{exp}} - (0,132 + 0,143) \cdot \frac{d_h}{L}$$

$$\Lambda = \Lambda_{\text{exp}} - 0,275 \cdot \frac{d_h}{L}$$

d_h et L valent respectivement 2,67 mm et 1,52 m.

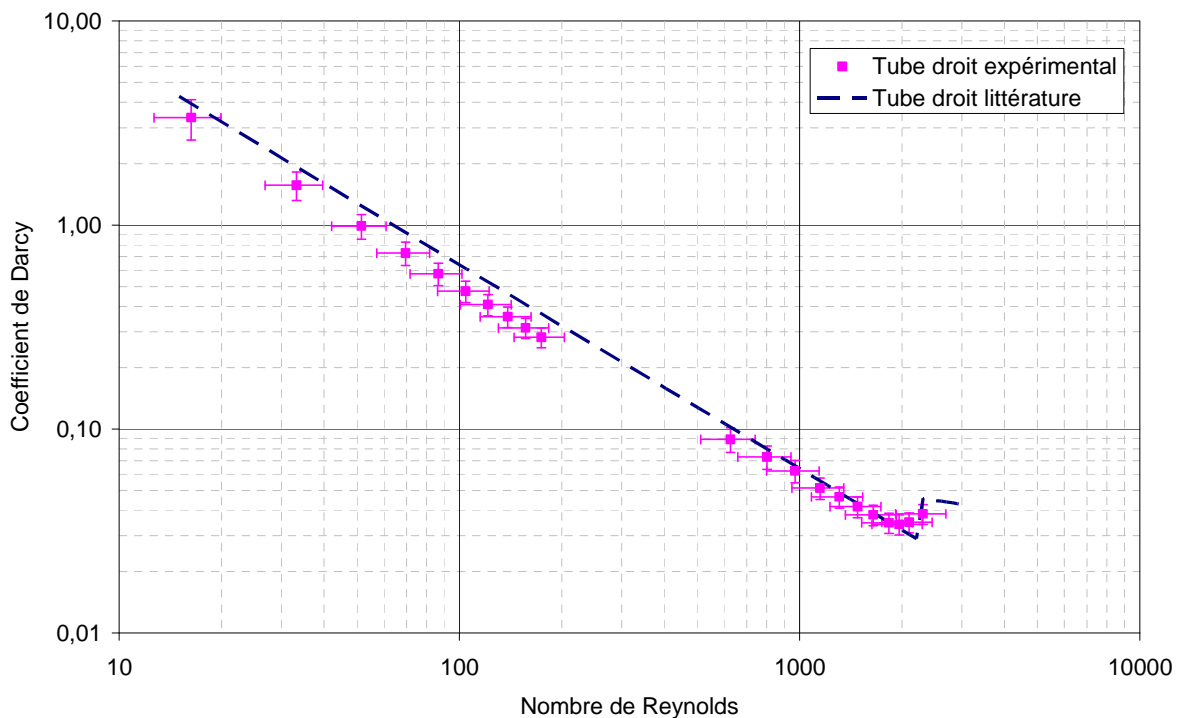


Figure III.12 : Evolution du coefficient de Darcy en fonction du nombre de Reynolds pour de l'eau ($Re > 500$) et du glycérol 67%w. ($Re < 100$) à 25°C.

La courbe expérimentale est située légèrement en dessous de la corrélation de la littérature, notamment pour les points à faible nombre de Reynolds. Seule l'incertitude sur la section de passage de la canalisation rectiligne n'a pas été prise en compte. Elle vaut 2x4 mm en entrée et en sortie mais elle n'est probablement pas constante sur toute la longueur, notamment à cause d'effets d'incurvation des faces. Cependant, l'écart maximal entre les courbes de la figure III.9 vaut en termes de perte de charge 0,03 bar, engendrant au maximum une erreur de 15% qui reste acceptable.

Il est ensuite intéressant de comparer le tube droit au tube ondulé de section rectangulaire identique (maquette f) comme indiqué sur la figure III.13.

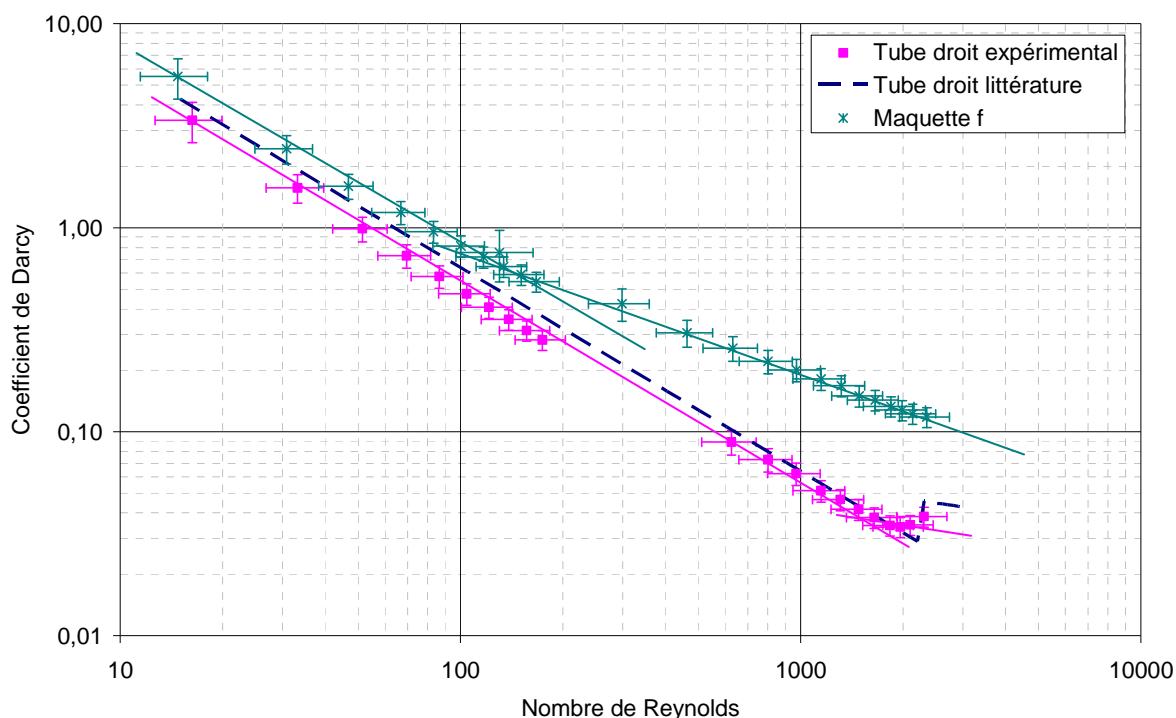


Figure III.13 : Evolution du coefficient de Darcy en fonction du nombre de Reynolds. Comparaison entre les résultats expérimentaux dans le tube droit et dans le tube ondulé pour de l'eau ($Re > 200$) et du glycérol 67%w. ($Re < 200$) à 25°C.

En régime laminaire, la courbe de la maquette 'f' est au dessus de celle du tube droit. Les coudes augmentent donc logiquement la perte de charge. Ce résultat est confirmé par le graphe III.14. En outre, la rupture de pente de la droite caractérisant le logarithme du coefficient de Darcy traduit le changement de régime dans le canal. Il se fait à plus bas Reynolds en présence de coudes, entre 200 et 300. En fait, l'apparition des vortex de Dean favorise l'instabilité de l'écoulement abaissant ainsi la transition laminaire/turbulent. Ce résultat, défavorable aux pertes de charge permet d'espérer atteindre des niveaux de transferts intéressants à faible Reynolds dans les canaux ondulés.

L'étude des pertes de charge dans les différentes géométries de canaux ondulés permet de compléter ces résultats.

b. Etude paramétrique

L'évolution du coefficient de Darcy en fonction du nombre de Reynolds est représentée sur la figure III.14 pour les maquettes de section carrée (maquettes a, b, c et d).

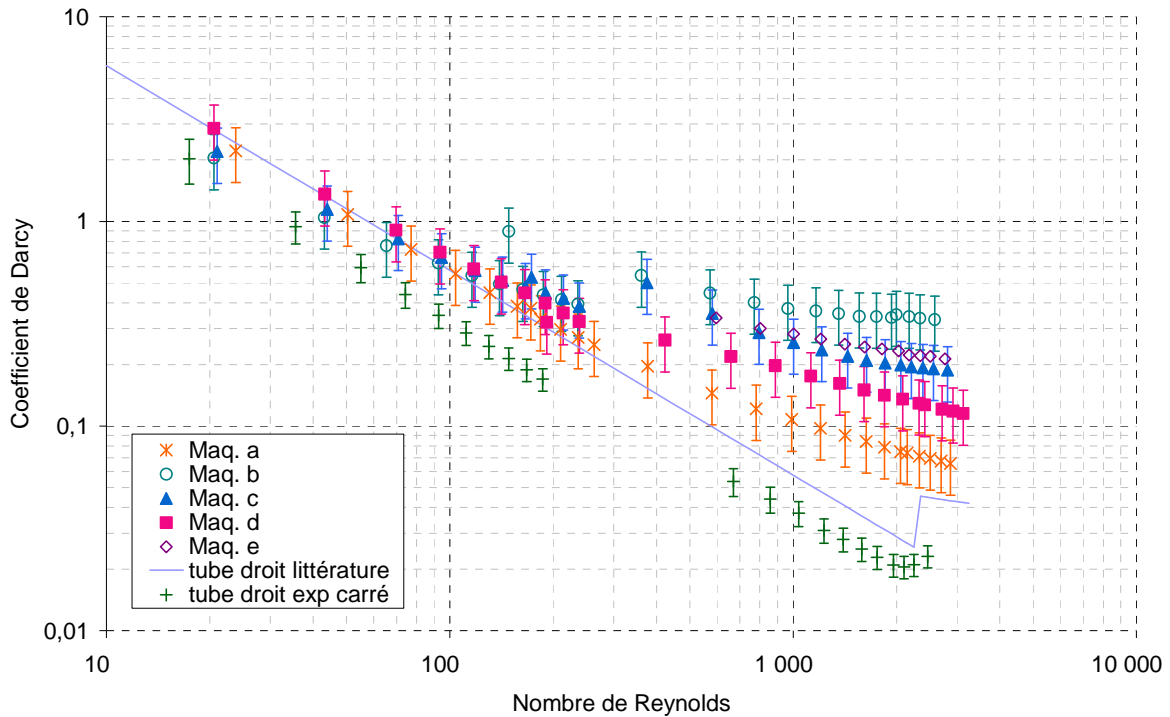


Figure III.14 : Evolution du coefficient de Darcy avec le nombre de Reynolds pour de l'eau ($Re > 400$) et du glycérol 67%w. ($Re < 200$) à 25°C.

Le graphe peut être découpé en deux régions de part et d'autre d'une valeur de 200 pour le nombre de Reynolds. En dessous, les coefficients de Darcy pour chaque géométrie sont centrés autour de la valeur caractéristique proche du tube droit théorique de section carrée. Dans ce régime, lorsque les fluides sont très visqueux par exemple, les coudes ont donc peu d'impact sur les pertes de charge. La figure III.15 en est une illustration.

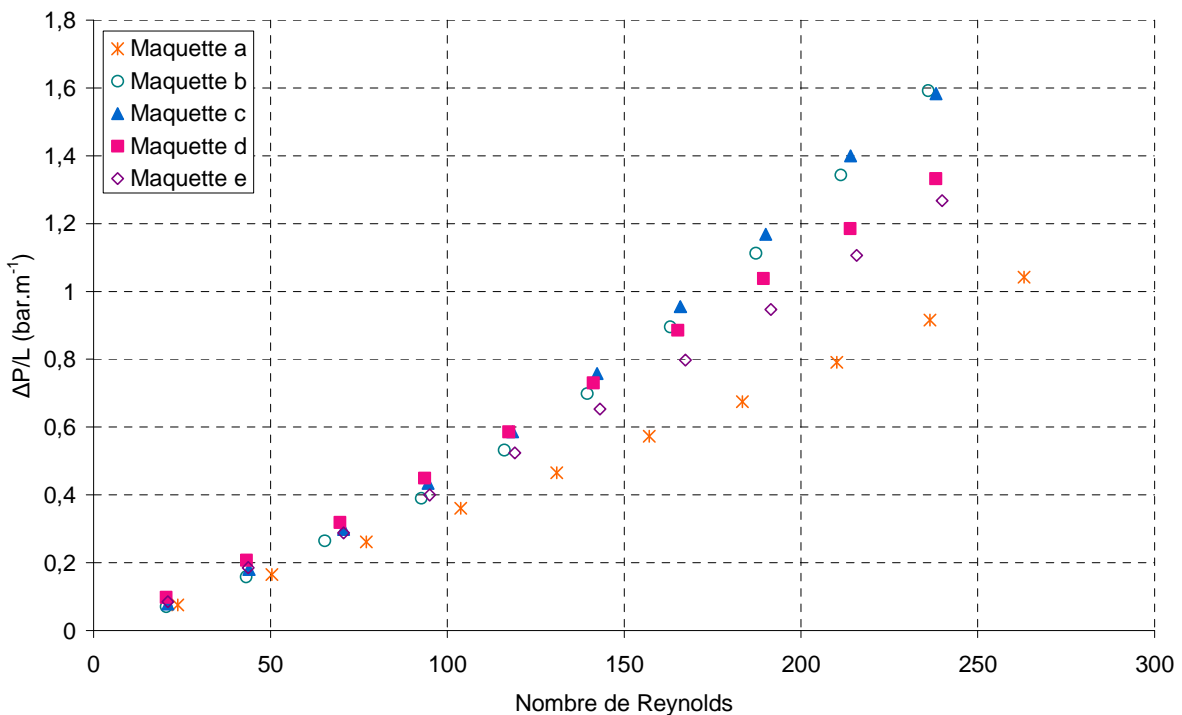


Figure III.15 : Perte de charge linéique en fonction du Reynolds (glycérol 67% w. à 25°C).

A partir de $Re=200$, l'effet de la géométrie se fait ressentir. L'écoulement commence à être déstabilisé, basculant en régime transitionnel. Les retournements suffisent déjà à le perturber (maquette 'a'). La perte de charge générée par chacun est évaluée à partir des résultats expérimentaux de la maquette 'a' et représentée sur la figure III.16 en fonction du Reynolds.

Pour les Reynolds inférieurs à 200, aucune différence majeure n'est à noter entre les géométries ondulées (maquettes 'b' à 'e'). Entre 200 et 250, les motifs comportant un nombre plus élevé de coudes par unité de longueur commencent à se démarquer. Cet effet est plus évident sur la figure III.16. La différence entre les deux graphes concerne surtout la maquette 'e'. En effet, sa perte de charge linéique pour des Reynolds très faibles est de l'ordre de celle de la maquette 'd', voire légèrement inférieure alors que ce n'est plus du tout le cas lorsque le nombre de Reynolds augmente. Cette tendance peut être associée à la formation et à la propagation des vortex de Dean qui commencent à apparaître aux environs de $De=150$. Cette valeur critique correspond à un Reynolds de 130 pour les maquettes 'b' ; 'c' et 'd' et à un Reynolds de 212 pour la maquette 'e' d'où la différence observée entre les deux graphes.

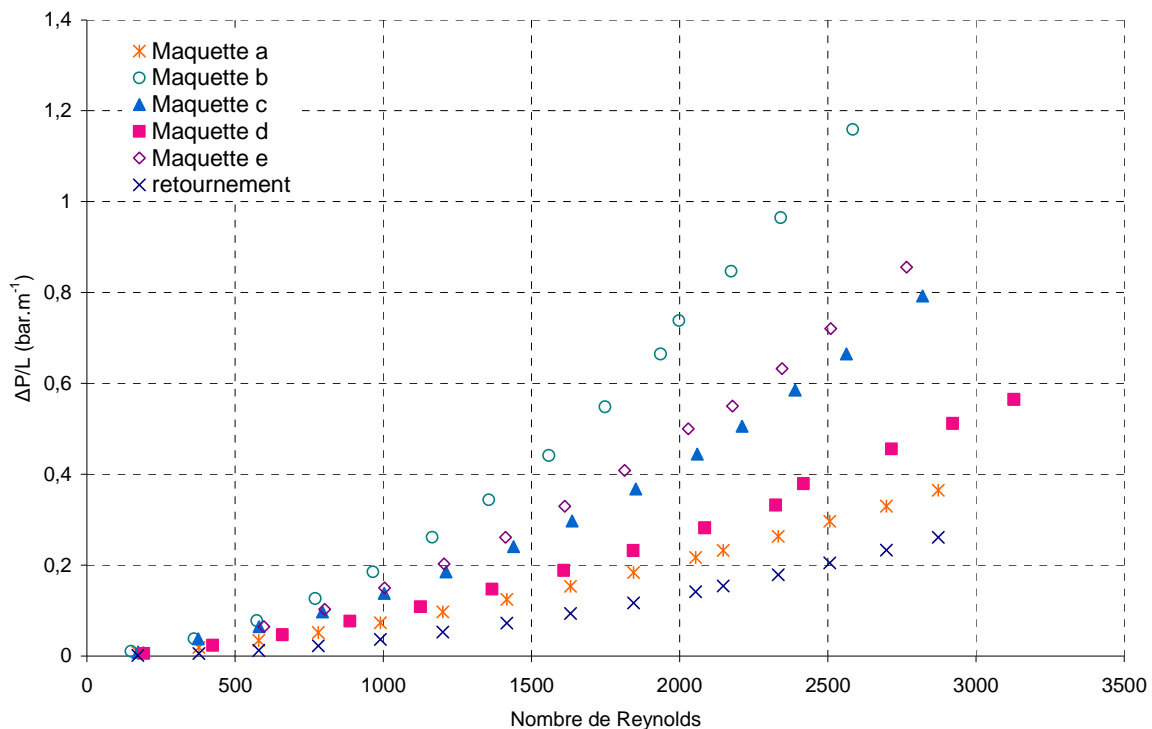


Figure III.16 : Perte de charge linéique en fonction du Reynolds (eau à 25°C).

Cette figure met bien en évidence l'augmentation de la perte de charge lorsque le nombre de coudes par unité de longueur augmente. C'est le cas pour les résultats des maquettes 'a' (20 coudes/m) et 'd' (44 coudes/m), puis 'd' (44 coudes/m) et 'c' (106 coudes/m).

L'effet de l'angle sur les pertes de charge n'est pas négligeable non plus. Le nombre de coudes par unité de longueur dans la maquette 'b' (90 coudes/m) est de l'ordre de celui de la maquette 'c' mais les pertes de charge générées sont bien supérieures. Pour mieux

visualiser ce phénomène, il est intéressant de calculer la perte de charge générée par chaque coude.

c. Effet de la persistance

Dans la maquette 'a', constituée de 37 rangées de 90 mm chacune, la perte de charge totale résulte de la somme de la perte de charge due aux longueurs droites et de celle due aux retournements. Les premières sont facilement évaluables et valent :

$$\Delta P = 0,9 \cdot \frac{64}{Re} \cdot \frac{L_d}{d_h} \cdot \frac{1}{2} \cdot \rho \cdot v^2 \quad (\text{III-7})$$

Les secondes sont plus complexes et deux phénomènes en sont à l'origine : l'effet des coudes eux-mêmes et un effet de persistance dans la longueur droite qui suit. Ce dernier difficilement quantifiable par le calcul concerne la propagation des vortex de Dean générés dans le coude. La figure III.17 permet de visualiser l'écoulement et le transport des boucles de recirculation en aval d'un coude. Il s'agit de la simulation numérique de l'écoulement dans la maquette 'e' à une vitesse de $0,2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ ($Re=400$). Plusieurs sections de passage ont été définies, perpendiculaires à l'écoulement principal. Les résultats numériques permettent de visualiser les profils de vitesse dans chaque section, le long du canal. Le code couleur, quant à lui, correspond à l'intensité de la vitesse axiale.

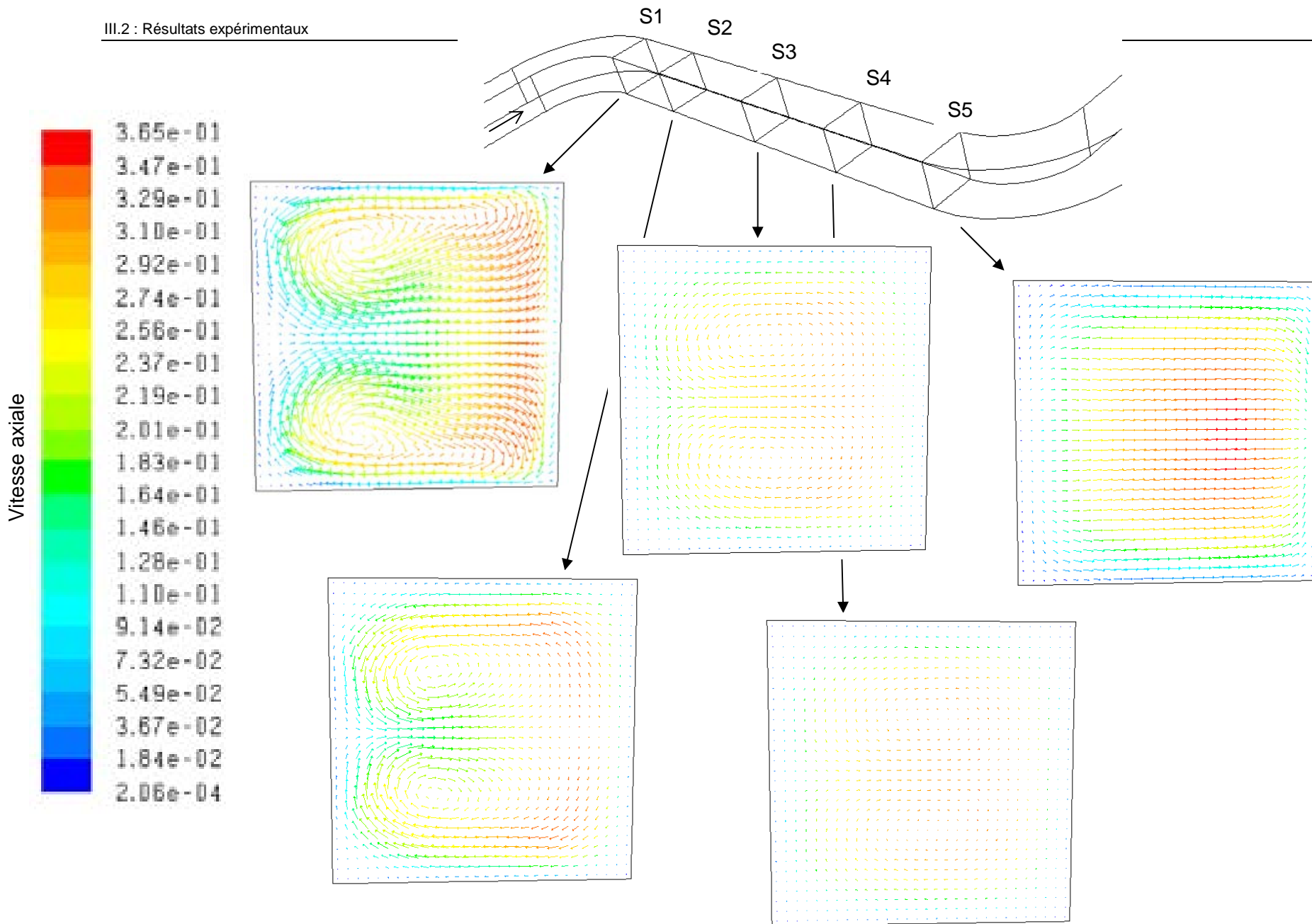


Figure III.17 : Modélisation d'une portion de la maquette 'e'. Profils de vitesse dans des sections perpendiculaires à l'écoulement principal.

Les boucles de recirculation, générées par le coude, sont de forte intensité en sortie de coude (S1), elles se propagent en s'atténuant jusqu'à être quasi invisibles (S3 et S4). Enfin, dans la dernière section, aucune boucle n'est visible, l'écoulement s'est relaminarisé mais il est intéressant de noter que le pic de vitesse axiale est toujours décentré par rapport au canal.

Ainsi, la perte de charge dans un canal ondulé et a fortiori dans les maquettes de n longueurs droites et n coudes ne correspond pas à n fois la perte de charge due à chaque élément (une longueur droite et un coude unique). Elle est en fait notée :

$$\Delta P_{\text{motif}} = \Delta P_{\text{coude}} + \Delta P_{\text{long dte}}$$

Avec

$$\Delta P_{\text{coude}} = \Delta P_{\text{courbure}} + \Delta P_{\text{persistance}}$$

Selon Idel'Cik (1986) le facteur de friction dans un coude dont le rayon de courbure vaut 4 mm et le diamètre hydraulique 2 mm, vaut :

$$f = 0,0175 \cdot \Lambda \cdot \frac{R_c}{d_h} \cdot \theta^\circ \quad (\text{III-8})$$

Λ est défini graphiquement en fonction du nombre de Reynolds (cf. diagramme 6.3, p. 196, Idel'Cik, 1986). Pour un Reynolds égal à 700, Λ vaut 0,27. Le tableau suivant récapitule les valeurs du coefficient de Darcy et de la perte de charge dans un coude puis dans une longueur droite (III-1). Les valeurs théoriques sont comparées aux données numériques obtenues à partir des simulations sous Fluent.

Les relevés numériques de pression, le long du canal, se situent à l'entrée du coude, à sa sortie, qui correspond à l'entrée de la longueur droite puis à la sortie de la longueur droite. La figure III.18 représente le canal modélisé et les sections d'analyse.

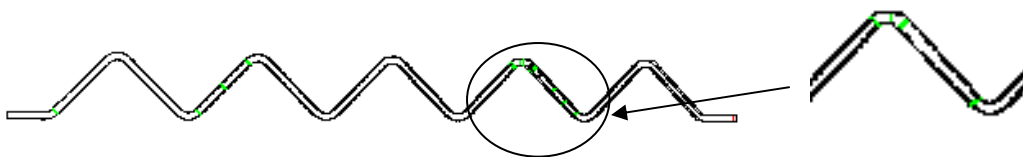


Figure III.18 : Détail de la géométrie maillée et des prises de pression (symbolisées en vert).

		Théorie	Résultats numériques
Coude	Coefficient de Darcy, Λ	0,27	-
	Perte de charge, ΔP (Pa)	16,77	16,76
Longueur droite	Coefficient de Darcy, Λ	0,084	-
	Perte de charge, ΔP (Pa)	16,82	45,53

Tableau III.6 : Comparaison des résultats numériques avec les données de la littérature pour le calcul des pertes de charge dans un coude et la longueur droite qui suit.

La perte de charge due au coude est rigoureusement la même dans les deux cas. L'écoulement en entrée du coude n'est donc pas perturbé par les motifs en amont. En

revanche, les boucles de recirculation secondaires générées dans le coude se propagent dans la longueur droite en aval. Les pertes de charge sont donc plus élevées, presque trois fois plus importantes, que pour un écoulement classique dans une conduite rectiligne de même longueur.

En ôtant, les pertes de charge dues à la longueur droite totale pour chaque maquette caractérisée expérimentalement et celles dues aux retournements et déterminées grâce aux résultats dans la maquette 'a', la perte de charge par coude est alors connue. Elle comprend l'effet de la courbure ($\Delta P_{\text{courbure}}$) et celui de la propagation des vortex secondaires ($\Delta P_{\text{persistance}}$). Le graphe III.19 en est une illustration.

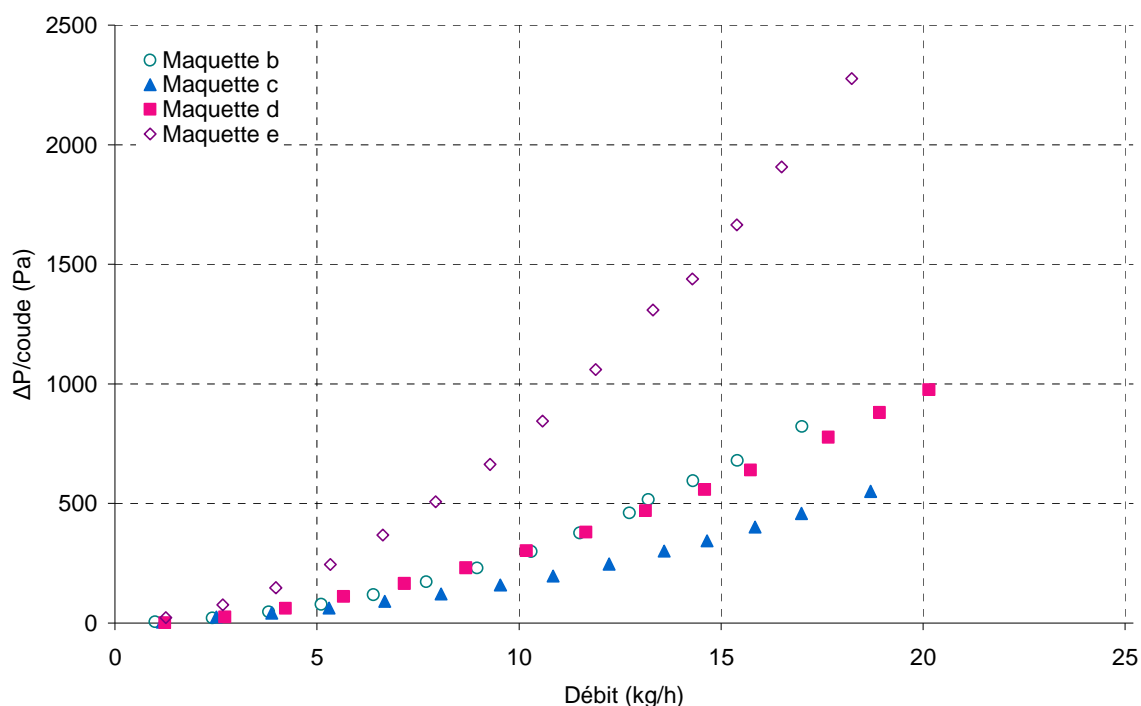


Figure III.19 : Perte de charge par coude en fonction du débit pour de l'eau à 25°C.

La maquette 'c' présente plus de pertes de charge par unité de longueur que la maquette 'd', ce n'est plus le cas lorsqu'il s'agit des pertes de charge par coude. La courbure est identique dans les deux maquettes et n'amène donc aucune différence. Par contre, la longueur en aval, le long de laquelle les recirculations se propagent, est trois fois plus importante dans la maquette 'd' que dans la maquette 'c' (20,28 mm contre 6,94 mm). C'est la part due à la longueur de persistance qui augmente la perte de charge par coude.

Dans la maquette 'b', les longueurs droites valent 6,94 mm mais les pertes de charge générées dans le coude ($\theta=75^\circ$) sont plus importantes que pour la maquette 'c', d'où une augmentation de la perte de charge par coude.

Enfin, la maquette 'e' présente la perte de charge par coude la plus élevée. Sa longueur courbe (6,3 mm) est 2,6 fois plus importante que dans la maquette 'd' (2,4 mm) pour une longueur droite équivalente influant donc logiquement sur la part due à la courbure mais également sur la longueur de persistance des vortex de Dean.

III.2.1.3 Synthèse

Les pertes de charge dans un canal ondulé sont constituées de trois composantes : la perte de charge due aux longueurs droites, la perte de charge due à la courbure et la perte de charge due à la persistance des tourbillons en aval d'un coude.

La longueur droite entre chaque coude est le paramètre clé. En effet, lorsqu'elle augmente, le nombre de coudes par unité de longueur diminue, abaissant la perte de charge globale. A contrario, si la longueur droite est inférieure à la longueur de persistance, l'augmentation de cette longueur droite favorise l'augmentation de la perte de charge due à la persistance, accroissant ainsi la perte de charge par coude jusqu'à un palier correspondant à la longueur de persistance.

L'angle des coudes influe également sur la perte de charge. Lorsqu'il augmente, la longueur de la courbure augmente ($L_c=0,0175 \cdot R_c \cdot \theta$) conduisant logiquement à l'accroissement des pertes de charge (équation III-1).

Le nombre de coudes et leur géométrie ont un effet non négligeable sur les profils de pertes de charge. Le paragraphe suivant étudie leur effet sur la distribution du temps de séjour.

III.2.2 LA DISTRIBUTION DU TEMPS DE SEJOUR (DTS)

Rappelons que les DTS sont évaluées par méthode spectro-photométrique, le traceur étant une solution colorée de permanganate de potassium concentré à $3 \cdot 10^{-2} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$ dont 0,1 mL sont injectés à l'aide d'une seringue. Les conditions opératoires sont données dans le premier paragraphe. L'analyse des résultats expérimentaux, réalisée après traitement des signaux qui permet de s'affranchir dans un premier temps des conditions d'entrée puis de modéliser l'écoulement, étudie l'influence de la géométrie sur le comportement de l'écoulement.

III.2.2.1 Conditions opératoires

Le fluide principal dans lequel est injecté le colorant est de l'eau distillée. Les expériences sont réalisées à température ambiante. Les DTS sont caractérisées pour six débits différents et pour chacun, trois tests de répétabilité sont réalisés. Le tableau III.7 récapitule les conditions opératoires.

	Débit ($\text{kg} \cdot \text{h}^{-1}$)	Nombre de Reynolds
Maquettes 'a', 'b', 'c', 'd', 'e'	2,7	375
	5	700
	8	1110
	10	1390
	12	1680
	15	2090
Maquette 'f'	8	740
	10	950
	15	1390
	18	1650
	22	2030

Tableau III.7 : Conditions opératoires pour la caractérisation des DTS.

III.2.2.2 Résultats expérimentaux

Afin de s'assurer de la validité des résultats, le bilan matière est calculé pour chaque essai. Il s'agit en fait d'estimer l'aire sous la courbe de réponse en concentration et de vérifier qu'elle est égale à celle de la courbe d'entrée, i.e. à la quantité de traceur injecté. Elle est calculée à l'aide de la méthode des trapèzes. L'erreur, e , due à l'emploi de cette méthode vaut :

$$e \leq M \cdot \frac{(t_f - t_0)}{12 \cdot n^2}$$

Avec $(t_f - t_0)$, l'intervalle de calcul de l'aire ; n , le nombre d'intervalles et M défini tel que $|f''(x)| \leq M$, f étant la fonction représentant l'évolution de la concentration.

Pour chaque test et à chaque débit, l'erreur est inférieure à 0,1%. Le bilan matière n'est donc pas faussé par la méthode de calcul de l'aire.

Lors des expérimentations, mise à part l'erreur de mesure due à l'instrumentation, les deux causes principales à la non-conservation du bilan de masse sont :

- Soit une traînée sur le pic d'injection très importante. Par phénomène de dilution, le traceur n'est plus détecté en sortie car sa concentration est inférieure au seuil de détection (erreur positive) ;
- Soit la non-détection du maximum du pic d'entrée, notamment à fort débit (erreur négative).

Dans chacun des tableaux de résultats présentés ci-après, les erreurs sur le bilan matière sont données. L'incertitude de mesure sur la concentration due à l'instrumentation vaut $\pm 5\%$. La plage acceptable d'erreur sur le bilan matière est fixée à $\pm 10\%$.

a. Canal de référence

Les premiers résultats qui sont présentés ici concernent le canal de référence. Il s'agit d'un tube droit de 1,52 m en acier inoxydable. Sa section de passage est rectangulaire de dimensions égales à 1,8 x 2,8 mm. Afin de comparer avec les résultats dans un canal de même section de passage mais coudé, les DTS ont été réalisées dans la maquette 'f' sur une longueur de 1,03 m. Le tableau III.8 donne les valeurs numériques du nombre de bacs équivalent.

Maquette	Débit (kg·h ⁻¹)	Vitesse (m·s ⁻¹)	Nombre de Reynolds	Erreur bilan matière (%)	Nombre de bacs, N _b	N _b /L (bacs·m ⁻¹)
Tube droit rectangulaire	12,0	0,49	1189	3,6	18	12
	15,2	0,62	1504	2,0	27	18
	17,1	0,69	1691	0,2	40	26
Maquette 'f'	15,0	0,52	1391	-9,0	73	73
	21,1	0,73	1955	0,5	86	86

Tableau III.8 : Comparaison du nombre de bacs dans un tube droit et dans la maquette 'f'.

L'apport des coudes au caractère piston de l'écoulement n'est pas négligeable. Le nombre de bacs dans la maquette 'f' est en effet plus élevé que dans le canal rectiligne, signifiant qu'elle se rapproche du comportement piston. En fait, les coudes génèrent les boucles de

recirculation, voire les vortex de Dean dans le plan normal à l'écoulement principal. Ainsi à chaque franchissement de coude, le milieu fluide est homogénéisé radialement en température, concentration et quantité de mouvement. Ce phénomène permet de réduire la dispersion axiale au sein de l'écoulement, avec notamment les éléments aux parois circulant moins rapidement qu'au centre du canal, comme c'est le cas par exemple pour le profil parabolique de vitesse en régime laminaire. C'est pour cela que les coudes ont un impact significatif sur la DTS et permettent de travailler avec un écoulement plus piston.

A partir de là, il est intéressant d'étudier l'influence de leur géométrie et du régime d'écoulement sur la DTS. C'est l'objet des paragraphes suivants.

b. Influence de la géométrie

La DTS dans chaque géométrie a été caractérisée pour différents débits. Le tableau III.9 récapitule les conditions opératoires, le volume calculé expérimentalement et le nombre de bacs équivalent déterminé par déconvolution pour chaque cas. Les graphes des DTS expérimentales les plus représentatifs sont en annexe B.

Maquette	Débit (kg·s ⁻¹)	Re	Longueur développée (m)	e _{aire} (%)	Nombre de coudes	Volume mesuré (mL)	Nombre de bacs
a	5,82	808	3,59	9	72	14,7	50
	9,10	1264		18		14,9	50
	9,62	1336		23		14,8	50
	11,02	1531		8		14,8	97
	13,38	1858		17		15,4	63
	14,67	2038		11		14,8	87
b	2,70	375	4,98	13	450	23,6	360
	5,05	701		4		24,1	310
	7,99	1110		-1		23,7	514
	9,98	1386		1		23,7	527
	12,1	1681		-1		23,8	568
c	2,68	372	3,55	4	377	16,3	157
	5,04	700		20		16,5	135
	8,03	1115		-2		15,9	317
	11,96	1661		16		15,9	220
	13,70	1903		10		15,7	331
d	2,60	361	3,70	14	165	16,9	29
	5,00	694		9		15,8	66
	8,00	1111		20		15,6	54
	12,00	1667		20		16,6	50
	14,60	2028		0		16,3	113
e	5,02	697	3,40	3	130	13,7	144
	8,00	1111		7		14,3	150
	12,00	1667		0		14,1	200
	15,02	2086		-7		14,4	217

Tableau III.9 : Récapitulatif des expériences de caractérisation de la DTS.

Le volume de fluide dans chaque maquette a été évalué par pesée. Le tableau III.9 fournit les volumes obtenus expérimentalement à partir des caractérisations des DTS. L'écart entre les deux est au maximum de 14%. Il reste donc acceptable étant donné les imprécisions de

mesure dues au remplissage de la maquette, à la mesure des volumes morts dus aux raccords, etc....Les résultats expérimentaux montrent que quelle que soit la géométrie, le nombre de bacs représentant la longueur du canal est élevé et dans la plupart des cas supérieur à 50. Ces résultats confirment le fait que les coudes favorisent le comportement piston de l'écoulement. Des différences notables sont cependant observées entre les maquettes, la figure III.20 les met en évidence.

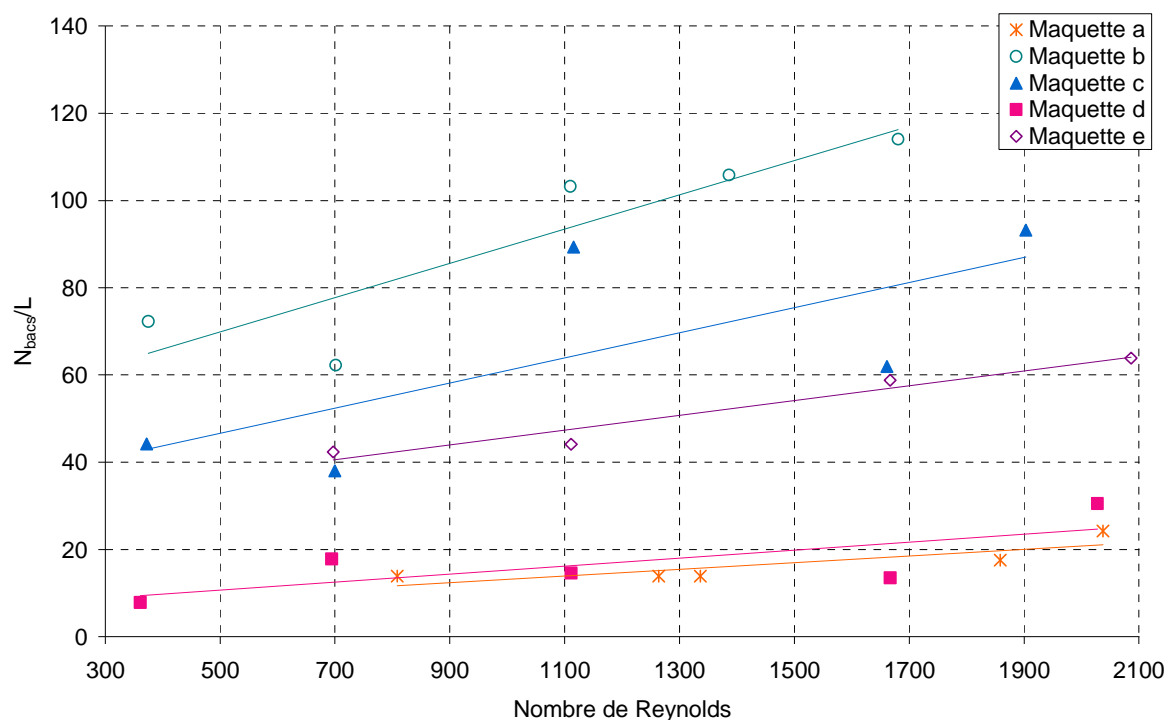


Figure III.20 : Evolution du nombre de bacs par unité de longueur en fonction du nombre de Reynolds.

Les maquettes 'b' et 'c' possèdent le même nombre de coudes par unité de longueur, or le nombre de bacs dans la première est beaucoup plus élevé que dans la seconde, et ce sur toute la gamme de Reynolds considérée. L'influence de l'angle des coudes sur le comportement de l'écoulement n'est donc pas négligeable. Le diamètre hydraulique et le rayon de courbure des deux géométries sont identiques (respectivement 2 et 1,5 mm). L'angle modifie la longueur courbe, soit 3,9 mm pour la maquette 'b' et 2,4 mm pour la maquette 'c'. Ainsi pour une longueur développée identique, le ratio entre longueur droite et longueur courbe est 1,6 fois plus important dans la maquette 'c'. Or ce sont les coudes qui favorisent l'homogénéisation radiale et donc l'écoulement piston, d'où une nette augmentation du nombre de bacs dans la maquette 'b' à iso-longueur développée et iso-nombre de coudes.

Concernant les maquettes 'd' et 'e', dont seul le rayon de courbure varie de l'une à l'autre (respectivement 1,5 et 4 mm), deux effets antagonistes sont mis en évidence. Le premier est similaire au cas précédent : la longueur courbe dans la géométrie 'd', 2,35 mm, est largement moins importante que celle de la géométrie 'e', 6,28 mm. Ainsi à iso-longueur développée, la part de longueur courbe est 2,7 fois plus importante dans la maquette 'e' que dans la maquette 'd'.

Le second effet, est dû aux recirculations de Dean. A iso-Reynolds, le nombre de Dean est d'autant plus important que le rayon de courbure est faible, les recirculations vont donc apparaître plus rapidement, i.e. à plus faible débit, dans la maquette 'd'. Dans la littérature (*Fellouah et al., 2006*), la valeur critique du nombre de Dean est aux environs de 150. Les nombres de Reynolds correspondants dans les maquettes 'd' et 'e' valent respectivement 130 et 210. En dessous de ces valeurs, des différences peuvent être observées, notamment au niveau du mélange radial. Au-delà, les vortex de Dean et les recirculations secondaires sont présents dans les deux géométries.

La caractérisation des DTS concerne les nombres de Reynolds de 300 à 2100. Dans cette gamme, au-delà du nombre de Dean critique, l'effet de la longueur de courbure est sans doute prépondérant sur celui des recirculations, expliquant les nombres de bacs plus élevés pour la géométrie 'e' que la 'd'.

De la même manière que le tableau III.8 mettait en évidence l'influence directe des coudes sur l'écoulement entre une canalisation rectiligne et la maquette 'f', le passage de la maquette 'd' à 'c', correspondant à la diminution de la longueur droite entre chaque coude et donc à l'augmentation du nombre de coudes par unité de longueur, favorise l'écoulement piston. Ce résultat est confirmé par la figure III.21 qui présente l'évolution du nombre de bacs par coude en fonction du nombre de Reynolds pour chaque géométrie. En effet, les coudes des maquettes 'c' et 'd' ont quasiment le même poids en nombre de bacs, c'est donc bien leur nombre par unité de longueur qui gouverne le comportement de l'écoulement.

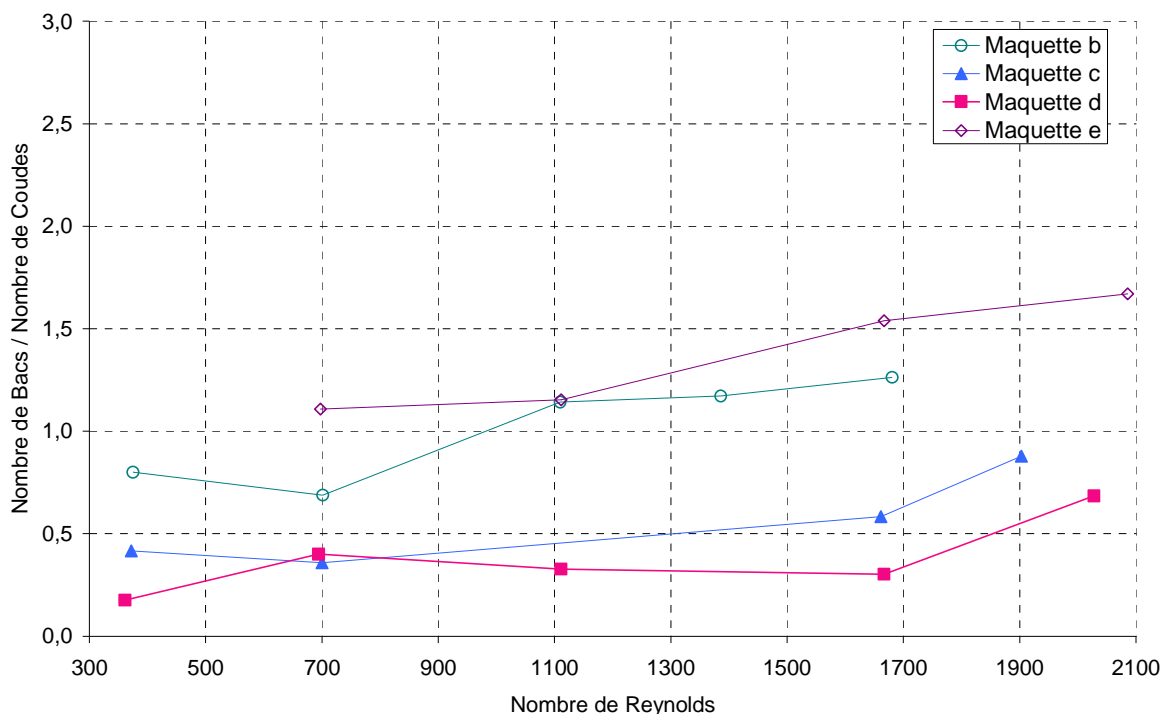


Figure III.21 : Evolution du nombre de bacs par coude en fonction du Reynolds.

Deux effets sont mis en évidence sur ce graphe. Le premier concerne l'évolution du nombre de bacs avec le Reynolds. Lorsque ce dernier augmente, l'écoulement est de plus en plus

piston. Cette évolution, bien que mineure dans les maquettes, est classique. En effet, dans une canalisation rectiligne, le profil de vitesse passe d'un profil parabolique (régime laminaire) à un profil plat (régime turbulent), réduisant donc la dispersion axiale. Les résultats expérimentaux suivent bien la même tendance.

La seconde remarque concerne la valeur numérique du nombre de bacs par coude. Elle est à chaque fois proche de 1, signifiant que chaque coude joue le rôle d'un bac parfaitement agité. Dans le cas des géométries à faible rayon de courbure (1.5 mm pour les maquettes 'c' et 'd'), la valeur est légèrement inférieure. Ce résultat s'explique par la diminution de la longueur de courbure, développé précédemment, mais également par un probable décrochement du profil de vitesse en aval des coudes. Ce dernier, plus conséquent lorsque le rayon de courbure diminue favorise la dispersion axiale et engendre des zones de recirculation donc stagnantes par rapport au flux principal à l'insu du comportement piston. Ces décrochements ont été observés par Zhang et al. (2004) et Comini et al. (2003). Ils ont tous les deux montré que la diminution du pas favorisait les recirculations axiales en sortie de coude. Entre les maquettes 'd' et 'e', l'augmentation du rayon de courbure de 1.5 à 4 mm, tout autre paramètre étant constant par ailleurs, entraîne l'augmentation du pas entre deux coudes de 33 mm (géométrie 'd') à 40 mm (géométrie 'e'). Il semble donc que la combinaison de ces deux effets, mène à une diminution du nombre de bacs

c. Influence du facteur de forme

Le facteur de forme est défini comme le rapport entre la hauteur et la largeur du canal. Son influence sur la DTS n'est pas négligeable. Aubin et al. (2009) ont caractérisé numériquement l'écoulement dans des micro-canaux de section rectangulaire. Les auteurs ont montré que le comportement du fluide se rapprochait d'un écoulement piston lorsque le facteur de forme diminuait, i.e. lorsque la section de passage s'éloigne du carré. Les caractérisations expérimentales dans les maquettes 'e' et 'f' donnent les mêmes résultats (cf. figure III.22). Leurs géométries sont identiques, seul le facteur de forme diffère et passe de 1 à 0,5.

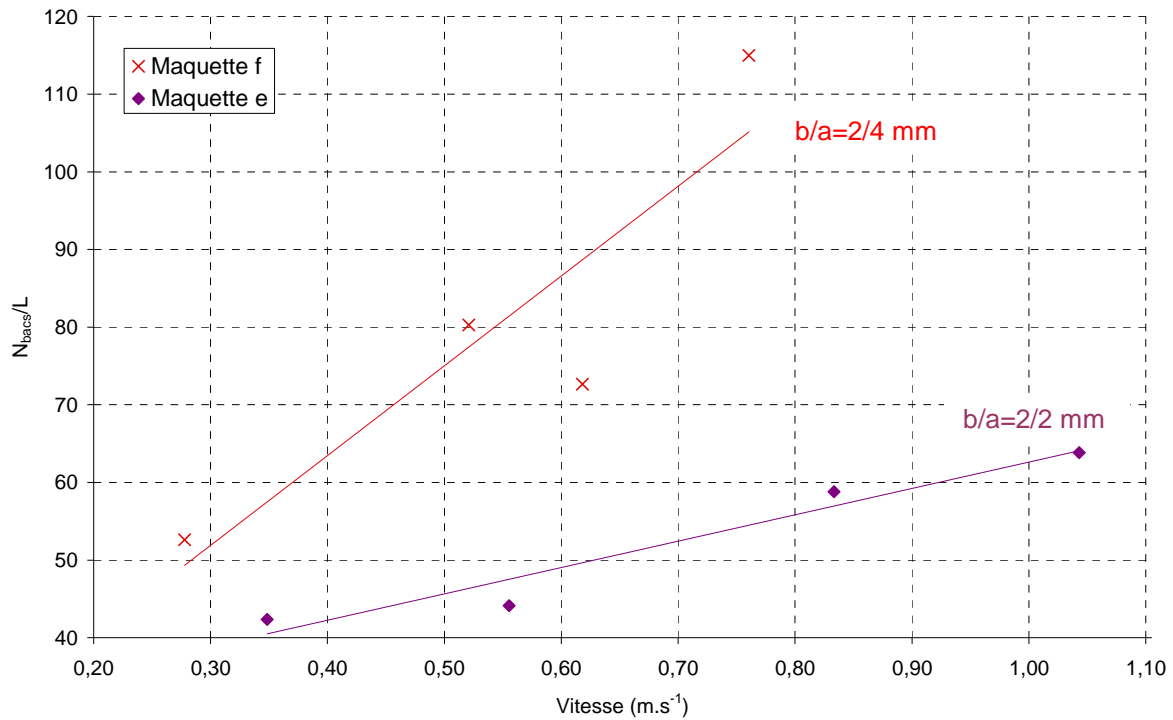


Figure III.22 : Evolution du nombre de bacs en fonction du facteur de forme et de la vitesse de passage.

Pour une vitesse de passage donnée, lorsque le facteur de forme (b/a) diminue, le nombre de bacs équivalent au canal augmente. De plus la pente d'évolution avec la vitesse est plus importante que pour la section de passage carrée. Le tableau III.10 donne les correspondances en nombre de Reynolds et en débit.

	Débit ($kg.s^{-1}$)	Vitesse ($m.s^{-1}$)	Reynolds	N_{bacs}/L
Maquette 'e'	5,02	0,35	697	144
	8,00	0,56	1111	150
	12,00	0,83	1667	200
	15,02	1,04	2086	217
Maquette 'f'	8,00	0,28	741	179
	15,00	0,52	1389	273
	17,80	0,62	1648	247
	21,90	0,76	2028	391

Tableau III.10 : Correspondances en débit, vitesse et Reynolds pour les maquettes 'e' et 'f'.

La différence de comportement lorsque le facteur de forme évolue est imputée aux boucles de recirculation. Dans un canal de section rectangulaire, en plus des boucles de recirculation habituelles proche des parois, de nouveaux vortex se créent dans la partie centrale de la section de passage (Fellouah et al., 2006) favorisant encore plus l'homogénéisation radiale. La figure III.23 illustre ce phénomène. Il s'agit de la modélisation des maquettes 'e' et 'f' à iso-vitesse. Les images représentent la section de passage en sortie de coude de mêmes coordonnées dans les deux cas. Le code couleur et la légende représentent l'intensité de la vitesse axiale.

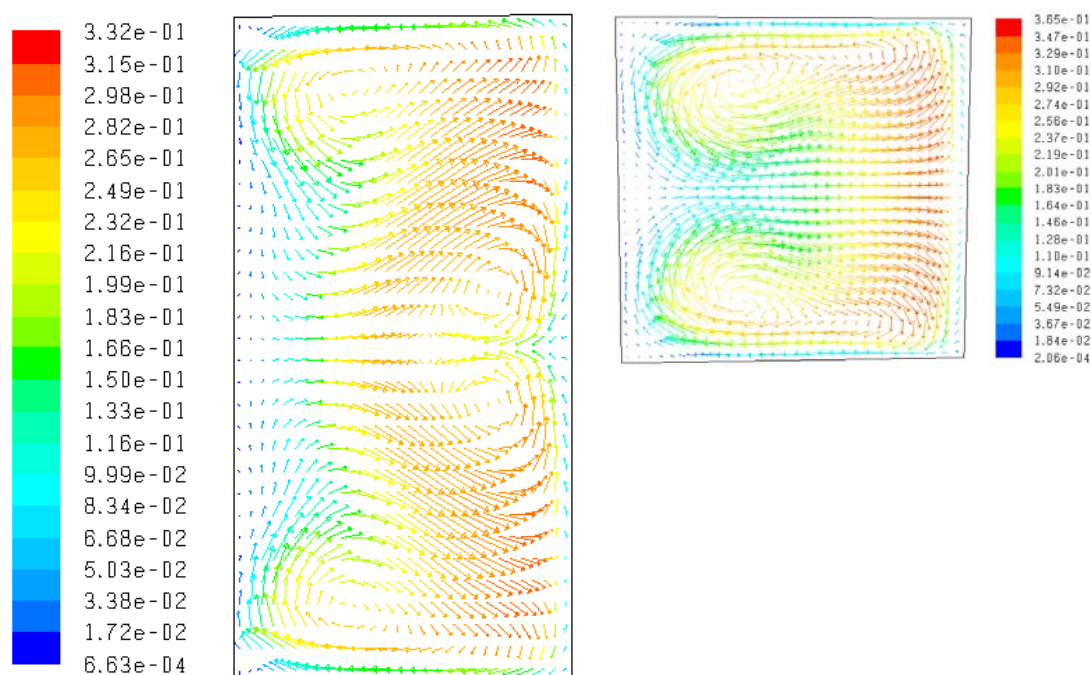


Figure III.23 : Visualisation d'une section de passage en sortie de coude dans les maquettes 'f' (à gauche) et 'g' (à droite). Le code couleur correspond à l'intensité de la vitesse axiale.

III.2.2.3 Synthèse

Quelle que soit la géométrie, le nombre de bacs équivalent aux canaux est supérieur à 50 voire à 100 dans la majorité des cas. Le caractère piston des écoulements est donc évident. Même si ce nombre est élevé et déjà satisfaisant, plusieurs paramètres géométriques influent encore sur la DTS.

L'impact des coudes étant identique, l'augmentation de leur nombre par unité de longueur, i.e. la diminution des longueurs droites, permet d'améliorer la DTS en se rapprochant du comportement piston (maquettes 'c' et 'd'). Par ailleurs, l'augmentation du ratio longueur courbe sur longueur droite pour une longueur développée équivalente renforce le caractère piston. C'est le cas lorsque l'angle augmente (maquettes 'b' et 'c') et lorsque le rayon de courbure augmente (maquettes 'd' et 'e'). Enfin le facteur de forme a un impact non négligeable puisque lorsque la section de passage s'éloigne du carré, la DTS s'améliore (maquettes 'e' et 'f').

III.3 SYNTHÈSE DE L'ÉTUDE DE L'HYDRODYNAMIQUE.

Ce chapitre a présenté les résultats des caractérisations des pertes de charge et de la distribution du temps de séjour pour chaque géométrie. La compilation de toutes les performances ainsi que les aspects d'extrapolation seront traités dans les chapitres V et VI.

Contrairement aux échangeurs de chaleur classiques dans lesquels la DTS n'a pas ou peu d'importance (détection de fuites ou de courts-circuits uniquement) ; dans un réacteur, l'écoulement doit se rapprocher au maximum du comportement piston. Cette caractéristique permet de s'assurer d'un temps de séjour identique pour toutes les particules de fluide et

d'une faible dispersion axiale évitant ainsi la formation de zones stagnantes, de volumes morts ou de courts-circuits. Leur présence peut en effet nuire à la sélectivité et au rendement mais également engendrer la formation de points chauds dans le cas de réactions exothermiques mettant en péril le procédé et les opérateurs. Pour s'assurer du caractère piston de l'écoulement dans les maquettes, les DTS de chacune ont été modélisées par une série de N bacs parfaitement agités en cascade. Les résultats expérimentaux ont montré que quels que soient le débit et la maquette, le nombre de bacs équivalent était toujours supérieur à 50 voire à 100 donc suffisant pour considérer l'écoulement comme piston. Ce résultat est d'autant plus vrai que le ratio entre longueur courbe et longueur droite augmente, ce qui est le cas lorsque le rayon de courbure ou l'angle augmentent, mais également lorsque la section de passage s'élanche (du carré vers le rectangle). Enfin, chaque coude est quasiment équivalent à un bac et il n'est donc pas nécessaire, du seul point de vue de la DTS, de travailler avec des géométries dont le nombre de coudes soit excessif.

Ce résultat est intéressant vis-à-vis des pertes de charge puisque celles-ci augmentent logiquement lorsque le nombre de coudes par unité de longueur augmente, ce qui est le cas lorsque la longueur droite entre chaque coude diminue. La contribution des coudes sur la perte de charge totale a été évaluée. Pour un motif donné (coude + longueur droite), trois contributions sont en fait à prendre en compte : celle de la longueur droite, celle de la longueur courbe et celle de la longueur de persistance. Les deux premières sont facilement évaluables à partir des données de la littérature, la troisième correspond à la perte de charge due à la propagation des vortex de recirculation générés dans le coude. Ainsi plus la longueur droite en aval du coude est importante, plus la part due à la persistance croît jusqu'à une longueur limite correspondant à la disparition des vortex. Les résultats expérimentaux ont montré que lorsque la longueur droite en aval des coudes augmentait, la perte de charge par motif augmentait pour une perte de charge totale qui s'avérait, au final, moindre. Par ailleurs, et de la même manière que pour les DTS, la perte de charge croît lorsque le ratio entre longueur courbe et longueur droite augmente, i.e. lorsque l'angle ou le rayon de courbure augmentent.

Finalement, l'étude de la DTS permet de conclure quant au comportement piston de l'écoulement. Le nombre de coudes donnant déjà une indication sur le nombre de bacs équivalent. Ainsi la contrainte sur l'hydrodynamique dépendra essentiellement de la limite fixée pour les pertes de charge selon l'application requise.

Evidemment d'autres performances sont à prendre en compte pour la mise en œuvre de réactions, notamment les transferts de chaleur et de matière. Les caractérisations de la thermique et du mélange font donc l'objet du chapitre suivant. La confrontation de tous les résultats est donnée dans le chapitre V.

CHAPITRE IV ETUDE THERMO-HYDRAULIQUE

La connaissance des pertes de charge et des distributions de temps de séjour dans les canaux ondulés est nécessaire mais non suffisante pour envisager une procédure d'optimisation de la géométrie. Ces résultats sont complétés par les caractérisations en termes de transfert thermique et de mélange. Les dispositifs expérimentaux, dont l'agencement des maquettes en particulier, ainsi que les méthodes employées, notamment pour évaluer les propriétés de mélange global et de micromélange seront détaillées. Un paragraphe sera consacré au comportement et au transport d'un milieu diphasique liquide/liquide dans les maquettes.

Les résultats expérimentaux des caractérisations du mélange et de la thermique sont présentés pour chaque géométrie de section carrée. L'influence des paramètres géométriques est étudiée et la confrontation de ces performances, avec les pertes de charge notamment, sera exposée dans le chapitre V. Il faut préciser à ce stade, que les caractérisations du micromélange et du comportement d'un écoulement diphasique liquide/liquide ne constituent que des premières approches et n'ont pas fait l'objet d'une étude approfondie dans les maquettes. L'objectif était ici d'acquiescer des tendances et des ordres de grandeurs ; des études plus poussées sur ces sujets pourront être menées par la suite.

IV.1 CARACTERISATION DES NIVEAUX DE MELANGE

L'opération de mélange est une étape clé dans le processus de réaction. Elle consiste en l'homogénéisation des champs de concentration comportant initialement de forts gradients. En la maîtrisant, il est possible d'accroître les rendements et les sélectivités et de réduire voire supprimer les zones d'accumulation de réactifs. Idéalement, le mélange est statistiquement parfait à l'échelle moléculaire s'il est plus rapide que le temps de réaction. Cette situation peut être rencontrée lorsque les cinétiques chimiques sont très lentes (on parle alors de régime chimique, l'étape de mélange n'étant pas limitante). Malheureusement ce n'est pas toujours le cas, d'où l'intérêt de sélectionner les géométries les plus performantes.

Dans le cas de liquides miscibles, Beek & Miller (1959), ont décrit le processus de mélange en trois étapes qui ont lieu en même temps mais à des échelles de taille différentes :

- dispersion d'un fluide dans l'autre par le champ des vitesses jusqu'à obtenir une concentration moyenne homogène dans tout le réacteur : c'est le macromélange ;
- réduction des paquets de fluide par la turbulence et l'action des microtourbillons (étirement et enroulement) jusqu'aux échelles de Kolmogoroff : c'est le micromélange ;
- diffusion moléculaire.

Les caractérisations expérimentales sont destinées à comparer les performances de chaque géométrie entre elles en termes de temps de mélange global (David & Xuereb, 2006) et de

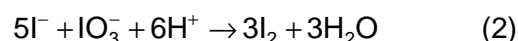
taux de micromélange (*Falk, 2006*). Des méthodes qualitatives ont donc été mises en œuvre, elles sont détaillées dans les paragraphes suivants.

Les maquettes caractérisées dans le chapitre précédent ont une longueur développée de 3,5 m. Pour caractériser le macromélange et le micromélange, seules quelques rangées voire quelques coudes suffisent. De nouvelles maquettes de plus petite taille ont donc été fabriquées ($L \approx 1$ m). Elles permettent d'une part de ne pas souiller les premières avec le réactif utilisé pour cette étude, à savoir l'iode, qui peut teinter le plexiglas et d'autre part de réduire les risques de fuites qui peuvent apparaître lorsque les maquettes sont souvent démontées puis réassemblées.

IV.1.1 CARACTERISATION DU MICROMELANGE

IV.1.1.1 Principe de la méthode

La technique dite « iodure-iodate », mise au point par Fournier et al. (1996) et Guichardon & Falk (2000) a été mise en œuvre dans chacune des maquettes. Elle repose sur un système de deux réactions parallèles :



La première réaction est instantanée tandis que la seconde est rapide et de vitesse sensiblement égale à celle des processus de micromélange en ajustant les concentrations. La ligne principale est alimentée par une solution contenant l'iodure (I^-), l'iodate (IO_3^-) et le borate (H_2BO_3^-) alors que l'injection est alimentée avec l'acide sulfurique en défaut stœchiométrique. En mesurant la quantité d'iode formée et en connaissant les concentrations initiales des réactifs, il est possible de calculer la sélectivité de l'iode, Y :

$$Y = \frac{\text{Quantité de H}^+ \text{ transformé en I}_2}{\text{Quantité initiale de H}^+}$$

Soit

$$Y = \frac{2 \cdot C_{\text{I}_2} \cdot (F_1 + F_{\text{inj}})}{C_{\text{H}^+,0} \cdot F_{\text{inj}}} \quad (\text{IV-1})$$

F_1 et F_{inj} étant respectivement le débit volumique de la ligne principale et le débit volumique de l'injection (i.e. de l'acide). Y varie entre deux extrêmes :

- $Y=0$ lorsque le mélange est instantané. Dès leur injection, les ions H^+ sont immédiatement dispersés de façon homogène dans le milieu. La réaction acido-basique étant plus rapide que la seconde, elle va consommer à elle seule tous les ions H^+ . L'iode n'est donc pas formé, sa concentration est nulle.
- $Y=Y_{\text{ST}}$ en situation totalement ségréguée, Y_{ST} étant une donnée fonction des concentrations initiales, dont le calcul est détaillé ci-dessous. Le mélange est très lent devant les cinétiques chimiques, des agrégats d'ions H^+ sont présents au sein du

fluide. Ils sont consommés en premier par la réaction acido-basique (1) et l'excès local réagit selon le deuxième schéma réactionnel pour former de l'iode. Le bilan matière sur un agrégat d'acide au sein du fluide avec q , le débit auquel les ions H^+ sont incorporés dans le milieu, s'écrit :

$$\frac{dn_{H^+}}{dt} = -q \cdot C_{H_2BO_3}^0 - 6q \cdot C_{IO_3^-}^0 \quad (IV-2)$$

De la même manière, le bilan matière sur l'iode s'écrit :

$$\frac{dn_{I_2}}{dt} = 3q \cdot C_{IO_3^-}^0 \quad (IV-3)$$

A la fin du processus, t_{max} , tous les ions H^+ ont été consommés, les équations IV-2 et IV-3 s'écrivent alors :

$$n_{H^+}^0 = q \cdot (C_{H_2BO_3}^0 + 6 \cdot C_{IO_3^-}^0) \cdot t_{max} \quad \text{et} \quad n_{I_2} = 3q \cdot C_{IO_3^-}^0 \cdot t_{max}$$

Et la sélectivité en situation totalement ségréguée vaut donc :

$$Y_{ST} = \frac{2 \cdot n_{I_2}}{n_{H^+}^0} = \frac{6 \cdot C_{IO_3^-}^0}{C_{H_2BO_3}^0 + 6 \cdot C_{IO_3^-}^0} \quad (IV-4)$$

A partir de là, il est possible de définir un indice de ségrégation normalisé, X_s . Il traduit le niveau de micromélange dans l'appareil caractérisé et varie entre 0 (mélange parfait) et 1 (ségrégation totale) :

$$X_s = \frac{Y}{Y_{ST}}$$

La valeur de Y_{ST} est constante et fixée par les conditions initiales de concentration. La détermination expérimentale de l'indice de ségrégation passe donc par la mesure de la concentration en iode en sortie de maquette. Cependant, il réagit instantanément avec les ions iodure en excès dans le milieu environnant selon le schéma réactionnel suivant :



dont la constante d'équilibre, K , vaut à 25°C (Ferrouillat, 2004) :

$$K = \frac{C_{I_3^-}}{C_{I_2} \cdot C_{I^-}} = 736,00 \pm 61 \text{ L} \cdot \text{mol}^{-1}$$

La quantité d'iode formée par la réaction test (2), $(n_{I_2})_{total}$ est alors égale à la somme du nombre de moles d'iode restant après l'équilibre (3) avec la quantité d'ions triiodures formés

par cette même réaction (3). Ces derniers sont détectables par spectrophotométrie à 353 nm. En mesurant l'absorbance, la loi de Beer-Lambert permet de calculer la concentration en ions triiodures, $C_{I_3^-}$:

$$A_{353\text{nm}} = \epsilon_{353\text{nm}} \cdot \ell \cdot C_{I_3^-}$$

avec

$A_{353\text{nm}}$, l'absorbance mesurée expérimentalement par spectrophotométrie ;

ϵ , le coefficient d'extinction molaire de l'ion triiodure à 353nm, $\epsilon = 2606 \text{ m}^2 \cdot \text{mol}^{-1}$ (Guichardon & Falk, 2000) ;

ℓ , la longueur du chemin optique dépendant de la cellule de mesure.

A partir de là, la concentration totale d'iode formé par la réaction (2) vaut :

$$(C_{I_2})_{\text{totale}} = C_{I_3^-} + \frac{C_{I_3^-}}{K \cdot C_{I^-}} = \frac{A_{353\text{nm}}}{\epsilon_{353\text{nm}} \cdot \ell} \cdot \left(1 + \frac{1}{K \cdot C_{I^-}} \right) \quad (\text{IV-5})$$

La quantité d'ions iodure consommés durant la réaction (3) est très faible devant leur concentration initiale, la relation (IV-5) peut donc être simplifiée en (Fournier et al., 1996) :

$$(C_{I_2})_{\text{totale}} = \frac{A_{353\text{nm}}}{\epsilon_{353\text{nm}} \cdot \ell} \cdot \left(1 + \frac{1}{K \cdot C_{I^-}^0} \right) \quad (\text{IV-6})$$

Les paramètres de l'équation (IV-6) sont tous connus, l'indice de ségrégation peut donc être calculé à partir des mesures expérimentales de l'absorbance. Cependant, il est important de préciser à ce stade que l'indice de ségrégation ne constitue pas une mesure absolue du micromélange. Il dépend en effet des concentrations initiales des réactifs et de la température opératoire. Les appareils caractérisés dans des conditions différentes ne peuvent donc pas être directement comparés entre eux, il est nécessaire pour cela d'employer un modèle reliant l'indice de ségrégation au temps de micromélange.

Les travaux suivants, visent à caractériser et comparer les performances de micromélange dans les différentes géométries. La comparaison de X_s dans chacune d'entre elles est donc suffisante à condition de travailler dans des conditions opératoires identiques. De plus, afin de comparer le niveau de micromélange en canal structuré dans les maquettes avec celui évalué par S. Ferrouillat (2004) dans ses travaux de thèse, les concentrations initiales des réactifs ainsi que la température opératoire sont prises identiques dans les deux cas. Les conditions expérimentales ainsi que le dispositif associé sont détaillés dans le paragraphe suivant.

IV.1.1.2 Dispositif expérimental et conditions opératoires

La mesure de la concentration se fait via l'absorbance des ions triiodures, le dispositif expérimental est alors similaire à celui utilisé pour la caractérisation des DTS. Il est composé

d'un spectromètre, d'une source lumineuse et d'une cellule spectrophotométrique placée en sortie de maquette. La longueur d'onde d'absorbance de l'ion triiodure vaut 353 nm, c'est donc la source deutérium, dont la gamme va de 200 à 400 nm, qui est utilisée. Le chemin optique de la cellule de mesure, ℓ , vaut 5 mm.

Les maquettes sont alimentées par la solution principale contenant les ions iodures, iodates et borates tandis que l'acide sulfurique circule dans la ligne secondaire. Le tableau IV.1 fournit les concentrations utilisées pour chaque réactif.

Composé	Concentration (mol/L)
Acide borique (H_3BO_3)	$1,21 \cdot 10^{-2}$
Soude (NaOH)	$6,06 \cdot 10^{-3}$
Iodate de potassium (KIO_3)	$2,33 \cdot 10^{-3}$
Iodure de potassium (KI)	$1,16 \cdot 10^{-2}$
Acide sulfurique (H_2SO_4)	0,25

Tableau IV.1 : Concentrations des réactifs pour la caractérisation du micromélange.

Une attention particulière doit être portée à l'injection des ions H^+ . Si le débit d'injection est trop important, il risque de perturber l'écoulement principal, en créant localement des gradients macroscopiques de concentration. Afin de s'assurer de ne caractériser que le micromélange, la courbe d'évolution de l'indice de ségrégation en fonction du rapport de débits entre l'écoulement principal et l'injection est tracée pour chaque système étudié. Lorsqu'il est faible, i.e. lorsque le débit d'acide est important, l'indice de ségrégation est élevé. Les perturbations et les gradients de concentration générés à l'injection ne favorisent pas le mélange intime des réactifs à l'échelle moléculaire, d'où la formation d'iode par la réaction (2). Lorsque le débit d'injection diminue, l'indice de ségrégation atteint un palier, signifiant que le processus n'est alors contrôlé que par le micromélange. La figure IV.1 illustre ces propos :

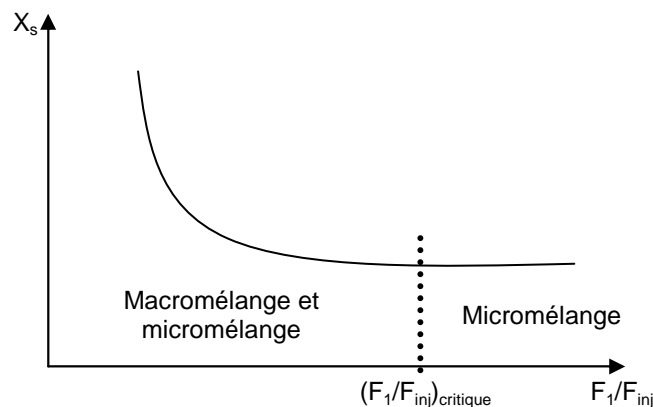


Figure IV.1 : Influence du rapport de débit sur l'indice de ségrégation (Ferrouillat, 2004).

Le rapport de débits critique est évalué pour chaque condition opératoire (cf. figure IV.2). Les concentrations initiales ne varient pas, seules les géométries peuvent avoir une influence.

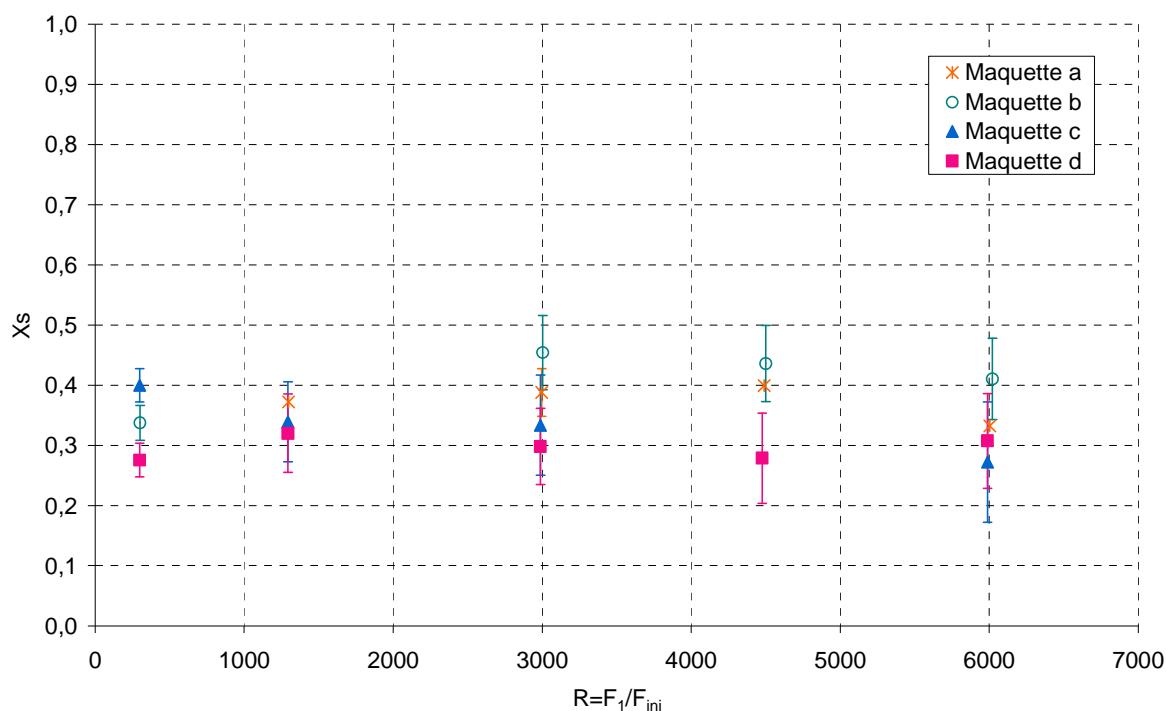


Figure IV.2 : Détermination du rapport de débit critique pour les géométries étudiées (Re=2000).

On constate une relative indépendance des valeurs de X_s aux rapports de débits étudiés. La gamme de ratios testés varie de 300 à 6000, ce qui correspond à des débits d'injection de 48,1 à 2,4 mL·h⁻¹ pour un flux total de 14,5 L·h⁻¹. Le palier semble déjà atteint pour R=300. Les caractérisations du micromélange pourraient donc être réalisées dès cette valeur de rapport de débits. Cependant, les résultats ont été obtenus pour un Reynolds de 2000. Or, on s'attend à ce que le rapport critique tende à se déplacer vers la droite, i.e. vers des valeurs plus importantes lorsque le Reynolds diminue (Ferrouillat, 2004, pp. 136). Sachant que nous serons amenés à faire varier le Reynolds vers des valeurs plus faibles que 2000, un rapport de débit critique de **3000** a été finalement retenu pour s'assurer de ne pas être perturbé par le macromélange. Dans ses travaux de thèse, Ferrouillat (2004) avait d'ailleurs sélectionné cette valeur à partir des courbes $X_s=f(R)$ pour un canal vide de diamètre hydraulique égal à 1,9 mm et une gamme de Reynolds variant de 550 à 4500.

Connaissant le rapport de débit critique, il est possible de fixer les conditions opératoires en Reynolds qui seront identiques pour chaque géométrie. Elles sont données dans le tableau IV.2.

	Débit principal, F_1 (L·h ⁻¹)	Débit d'acide, F_{inj} (mL·h ⁻¹)	Nombre de Reynolds	Vitesse débitante (m·s ⁻¹)
Maquette 'x'	2,14	0,72	300	0,15
	3,90	1,30	540	0,27
	5,76	1,92	800	0,40
	10,09	3,37	1400	0,70
	14,41	4,81	2000	1,00

Tableau IV.2 : Conditions opératoires pour la détermination du niveau de micromélange dans les maquettes. T=25°C ; R=3000.

Les débits d'acide étant très faibles, la ligne d'injection ne peut donc pas être alimentée par le circuit secondaire du banc d'essai dont la gamme de travail de la pompe varie de 0,05 à 5 L·h⁻¹. Elle a été remplacée par un pousse-seringue (Harvard apparatus, modèle PHD 22/2000). La plage de débits disponibles va de 1,5 µL·h⁻¹ à 112 mL·min⁻¹ avec une précision de ± 0,5%.

En plus de l'attention portée au débit d'injection, sa position peut également influencer sur le niveau de micromélange. Dans chaque maquette, deux positions ont été testées (nous y reviendrons ci-dessous, figure IV.4).

Les conditions de débit étant fixées, le protocole opératoire est le suivant :

- 1) Préparation des solutions de réactifs (9 Litres par maquette) : l'acide borique et la soude sont mélangés en premier afin de fixer le pH du milieu. Il permettra d'éviter la dismutation de l'iode par la suite. Ensuite l'iodure et l'iodate de potassium sont ajoutés ;
- 2) Agitation de la solution thermostatée à 25°C pendant 2 heures ;
- 3) Remplissage de la seringue de 10 mL avec l'acide sulfurique ;
- 4) Allumage du spectromètre et 'blanc' sur la luminosité ambiante ;
- 5) Alimentation de la maquette avec les réactifs (ligne principale) ;
- 6) Mesure du spectre de référence de la solution de réactifs à 353 nm ;
- 7) Alimentation en acide sulfurique au débit souhaité (tel que R=3000) ;
- 8) Enregistrement en ligne de l'absorbance jusqu'à sa stabilisation.

IV.1.1.3 Résultats expérimentaux

Pour comparer le niveau de micromélange entre les maquettes 'a', 'b', 'c', 'd' et 'e' (section de passage carrée), l'information sur les indices de ségrégation est suffisante puisque les conditions opératoires en concentrations et en température sont identiques. L'influence de la géométrie, du nombre de Reynolds et de la position de l'injection ont été étudiées. Les perspectives d'amélioration concernant l'utilisation de la méthode iodure-iodate dans les canaux ondulés concluent ce paragraphe, notamment pour envisager la comparaison des performances des maquettes avec celles d'autres technologies.

La position de l'injection de l'acide sulfurique est située soit dans la courbure soit le long d'une longueur droite à égale distance entre deux coudes. Dans les deux cas elle est perpendiculaire au plan des canaux. Les deux positions sont représentées sur la figure IV.3.

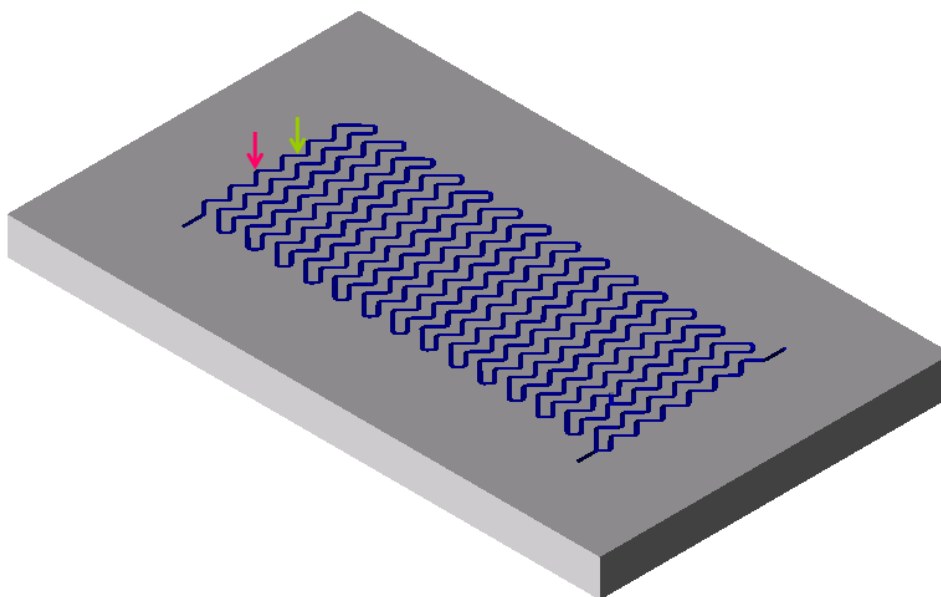


Figure IV.3 : Représentation 3D de la maquette 'c' et des deux injections, l'une dans le coude (flèche rose) et l'autre dans la longueur droite (flèche verte).

La figure IV.4 représente l'évolution de l'indice de ségrégation, X_s , en fonction du nombre de Reynolds lorsque l'injection est située au niveau de la longueur droite.

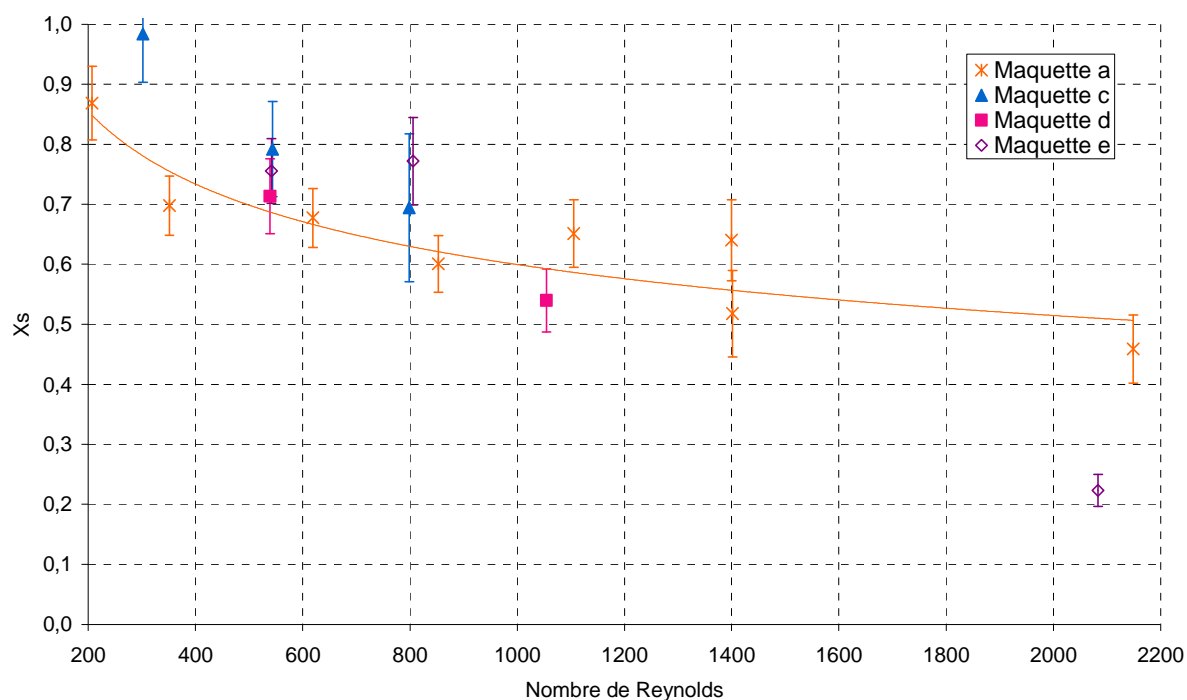


Figure IV.4 : Evolution de X_s en fonction du Reynolds lorsque l'injection est au niveau de la longueur droite - $R=3000$.

A l'incertitude expérimentale près, les points sont superposés quelle que soit la géométrie. Du fait de la position de l'injection, seule la longueur droite est concernée et le niveau de micromélange est figé avant d'arriver au coude situé en aval. Comme les sections de

passage sont identiques, il n'y a donc aucune différence entre les maquettes. En revanche, on peut noter l'influence du nombre de Reynolds sur l'indice de ségrégation. Lorsqu'il augmente, i.e. lorsque la vitesse débitante augmente, le niveau de turbulence est plus important engendrant un meilleur micromélange (décroissance de X_s).

Nous avons ensuite étudié la seconde position d'injection, à savoir dans le coude conformément au schéma de la figure IV.3. Les résultats sont portés sur la figure suivante (Fig. IV.5).

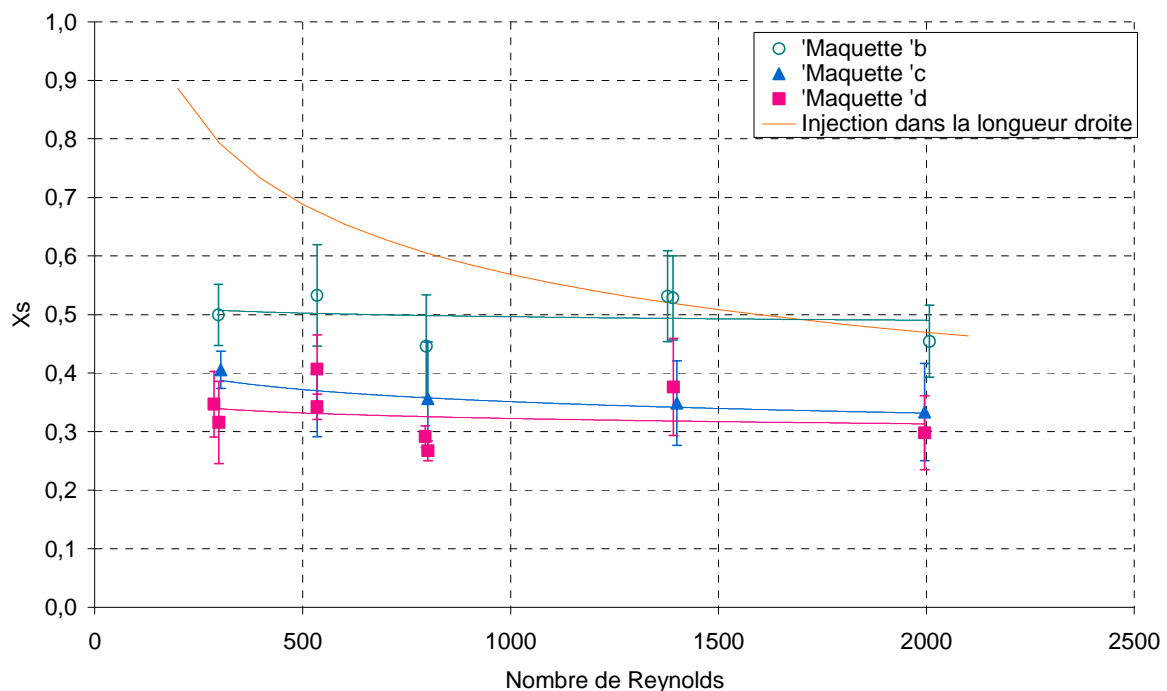


Figure IV.5 : Evolution de l'indice de ségrégation en fonction du Reynolds lorsque l'injection est dans le coude – $R=3000$.

Deux observations principales peuvent être faites :

- Influence de la position d'injection ;
- Influence de la géométrie des maquettes.

Lorsque l'injection se fait dans les courbures, on s'attend à une intensité de mélange plus importante, contribuant à une amélioration du micromélange, ce que montre la figure IV.5 en comparaison avec la figure IV.4. Le fait d'injecter dans le coude induit une diminution de l'indice de ségrégation jusqu'à 50%.

Les points expérimentaux des maquettes 'c' et 'd' sont quasiment superposés. Or ces deux géométries ne diffèrent que par la longueur droite entre deux coudes, ce paramètre semble donc ne pas avoir d'influence sur le micromélange. En revanche, la comparaison des courbes des maquettes 'b' et 'c' démontre l'influence de la géométrie des coudes et dans ce cas de l'angle du coude. Lorsque celui-ci augmente de 45° à 75° , le micromélange est moins performant, se traduisant par une augmentation de l'indice de ségrégation ($\times 1,5$).

IV.1.1.4 Conclusions et perspectives

Ces travaux ne constituent qu'une première approche qualitative du micromélange généré dans les canaux ondulés. Nos expériences, basées sur celles de S. Ferrouillat (2004), ont mis en évidence l'importance de l'injection qui semble être le paramètre clé. En fonction de la position d'injection, on peut aller jusqu'à doubler l'efficacité du micromélange. On est alors en mesure de penser que l'angle de l'injection par rapport au canal principal est également un paramètre influant sur la qualité du mélange. Pour compléter ces travaux, l'étude de l'influence de la position de l'injection sur le micromélange serait donc intéressante à mener. Par manque de temps, cette question n'a pas été approfondie. Par ailleurs, l'ajustement des concentrations des réactifs permettrait d'accroître la sensibilité de la réponse pour plus de précision de la mesure.

A ce stade, nous avouons n'avoir pas eu la prétention d'aller plus avant dans l'exploitation des résultats expérimentaux, notamment en matière de calcul de temps de micromélange par le biais de la modélisation, et ce d'autant que la question du choix des modèles de micromélange fait toujours débat. Cependant, en perspective à ce travail préliminaire, et pour s'affranchir des conditions initiales de la réaction (concentrations et température), il sera intéressant d'estimer les temps de micromélange via un modèle comme par exemple le modèle d'incorporation de Villermaux (1992). Cela permettrait de positionner les canaux ondulés dans la gamme des technologies de mélange.

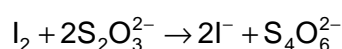
IV.1.2 DETERMINATION DU MELANGE GLOBAL

IV.1.2.1 Principe de la méthode

Le mélange de diverses espèces en milieu monophasique a fait l'objet de nombreux travaux dans le passé, et de nombreuses techniques de caractérisation ont vu le jour. La visualisation, quand elle est possible, s'impose de loin comme étant la plus simple à mettre en œuvre et à exploiter sans avoir recours à des capteurs intrusifs susceptibles de perturber l'écoulement. Elle impose néanmoins que l'appareil et les fluides soient transparents, ce qui nous a conduit à opérer avec des maquettes en plexiglas et de l'eau distillée comme fluide principal. La seule critique à l'observation visuelle réside naturellement dans la subjectivité de l'œil de l'opérateur.

La méthode que nous avons choisie consiste à mettre en œuvre un système réactif dont la cinétique est quasi instantanée et qui provoque un changement de coloration du milieu. Il est plus simple de repérer les zones colorées au sein d'un milieu transparent que l'inverse et c'est donc une réaction de décoloration qui a été privilégiée.

La réaction d'oxydo-réduction entre l'iode et le thiosulfate de sodium est instantanée et suit le schéma réactionnel suivant :



L'iode, de couleur brune, est décoloré par le thiosulfate de sodium. Lorsque la réaction est complète, le milieu devient totalement incolore (cf. figure IV.6).

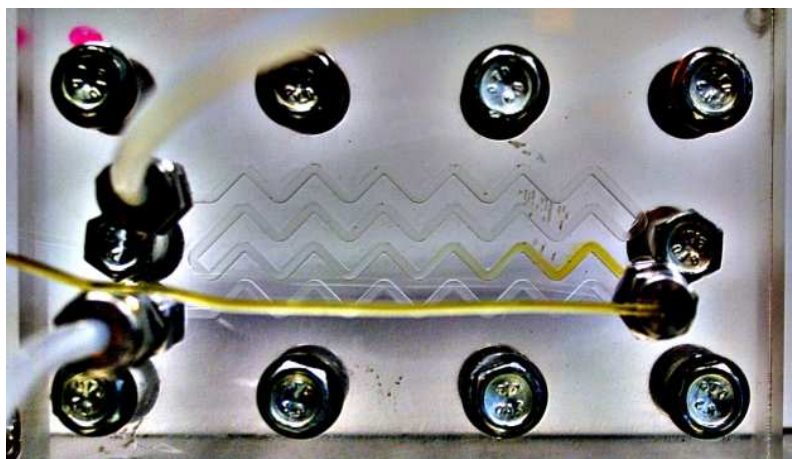


Figure IV.6 : Exemple de mise en œuvre de la réaction de décoloration dans la maquette 'c'

La cinétique chimique étant très rapide, le mélange est le phénomène limitant. Ainsi, en régime permanent, la longueur nécessaire à la décoloration complète de l'iode correspond à la longueur de mélange et en connaissant la vitesse débitante (i.e. le débit), il est possible d'estimer un temps de mélange global, t_m .

IV.1.2.2 Dispositif expérimental et conditions opératoires

La méthode de caractérisation du mélange global est simple à mettre en œuvre et ne requiert pas de dispositif particulier en plus du banc d'essai. Les débits des deux réactifs sont identiques et varient de 0,5 à 10 kg·h⁻¹. Les têtes de pompe adaptées sont donc placées sur chaque ligne de courant. Ensuite, les images sont enregistrées grâce à un appareil photographique numérique (Canon EOS 400D Digital), les images vidéo n'étant pas nécessaires en régime permanent. Afin de mieux visualiser la fin de la décoloration de l'iode, les photographies sont retouchées à l'aide du logiciel GIMP. La figure IV.7 compare les images avant et après traitement.

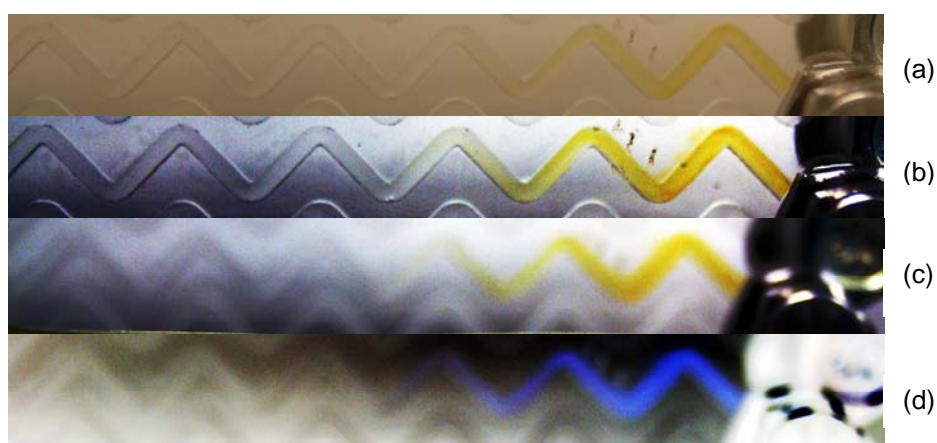


Figure IV.7 : Traitement des photographies pour évaluer la longueur de mélange. (a) Photographie d'origine ; (b) Amélioration du contraste ; (c) Diminution de la netteté des contours ; (d) Inversion des couleurs.

Les conditions opératoires sont fournies dans le tableau IV.3. Le ratio entre les réactifs est fixé à 1. Les débits sont tels que la gamme de Reynolds et donc de nombre de Dean est à la fois en dessous et au dessus du seuil critique (aux environs de $De = 150$).

	C_{iode} ($\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$)	C_{thio} ($\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$)	$F_{\text{iode}}=F_{\text{thio}}$ ($\text{L}\cdot\text{h}^{-1}$)	v ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)	Nombre de Reynolds	Nombre de Dean
Maquettes 'a' ; 'b' ; 'c' ; 'd'	$5\cdot 10^{-3}$	$1,4\cdot 10^{-2}$	0,50	0,07	139	160
			0,75	0,10	208	241
			1,13	0,16	313	361
			2,50	0,35	720	800
			5,00	0,69	1400	1600
Maquette 'e'			0,50	0,07	139	98
			0,75	0,10	208	147
			1,13	0,16	313	221
			2,50	0,35	720	500
			5,00	0,69	1400	1000

Tableau IV.3 : Conditions opératoires pour la caractérisation du mélange global à 25°C.

Le protocole opératoire commun à chaque campagne d'expériences est le suivant :

- 1) Préparation des solutions de thiosulfate de sodium et d'iode ;
- 2) Agitation des solutions thermostatées à 25°C ;
- 3) Mise en route des pompes et ajustement des débits ;
- 4) En régime permanent (après quelques minutes), photographie du canal ;
- 5) Traitement des images avec le logiciel GIMP.

IV.1.2.3 Résultats expérimentaux

Les résultats expérimentaux permettent d'étudier l'influence du nombre de Reynolds, du nombre de Dean et des paramètres géométriques sur le temps de mélange. Les valeurs numériques des temps de mélange sont données en annexe C.

La Fig. IV.8 présente l'évolution des temps de mélange en fonction du nombre de Reynolds pour les différentes maquettes. Comme on le voit sur cette figure, deux zones peuvent être identifiées de part et d'autre de $Re=700$.

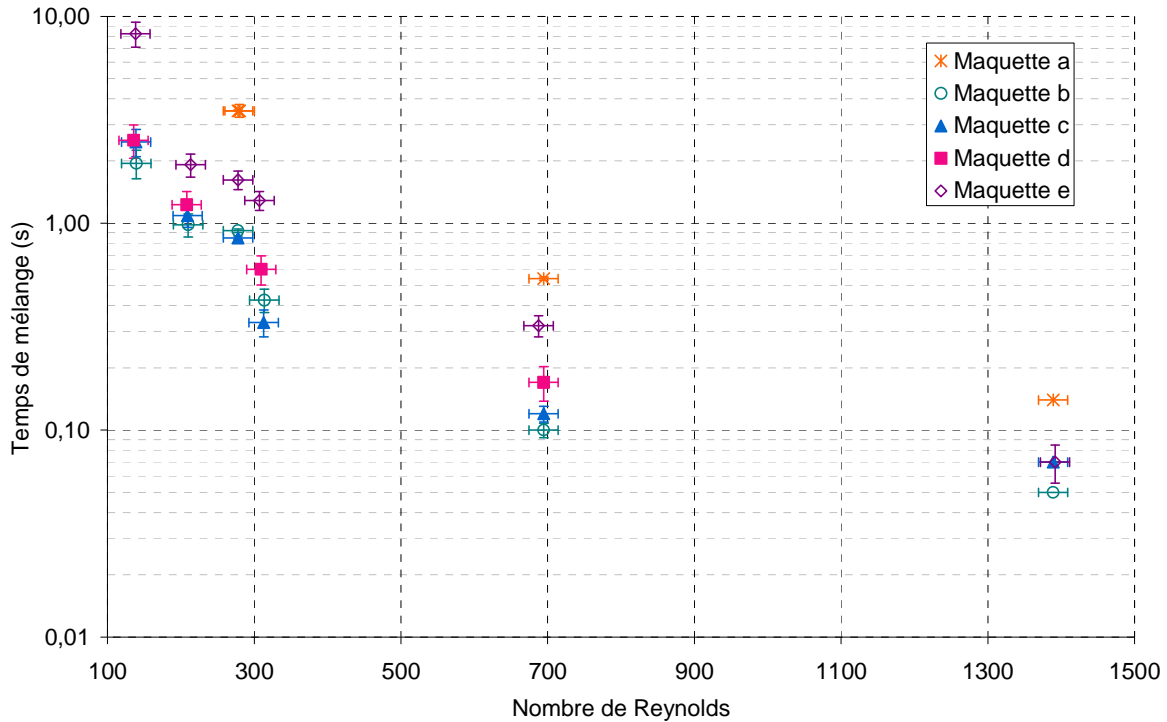


Figure IV.8 : Evolution du temps de mélange en fonction du Reynolds.

L'effet de la géométrie se fait ressentir pour les faibles Reynolds. Au-delà de $Re=700$, les valeurs de temps de mélange tendent à se regrouper.

La maquette 'e' présente des performances légèrement inférieures à celles des autres géométries avec un saut au niveau de $Re=150$ (le temps de mélange est alors trois fois plus important que dans la maquette 'd'). Cette différence peut s'expliquer par la structure de l'écoulement qui n'est pas similaire dans les deux géométries. En effet, les rayons de courbure des maquettes 'd' et 'e' valent respectivement 1,5 et 4 mm. Pour un Reynolds de 150, le nombre de Dean correspondant vaut alors dans chacune des géométries 160 et 100. Rappelons que De est donné par :

$$De = Re \cdot \sqrt{\frac{d_h}{R_c}} \quad (IV-7)$$

Dans la littérature (chapitre I), le nombre de Dean critique, i.e. la valeur au-delà de laquelle apparaissent les vortex de Dean, est situé entre 150 et 250. Ces recirculations de fluide, générées par les coudes dans un plan normal à l'écoulement principal, favorisent l'homogénéisation radiale des gradients de température, de vitesse mais également de concentrations. Cette propriété permet donc d'améliorer les conditions de mélange par rapport à un écoulement classique dans un coude où seules les boucles de recirculations secondaires dues à la force centrifuge agissent. Ainsi, il semblerait que le nombre de Dean critique ait été franchi dès les Reynolds de 150 pour les maquettes 'b', 'c' et 'd' ($De=160$) mais pas pour la maquette 'e' ($De=100$), d'où la différence marquée sur les temps de mélange. La figure IV.9 illustre ces propos en représentant le temps de mélange en fonction du nombre de Dean.

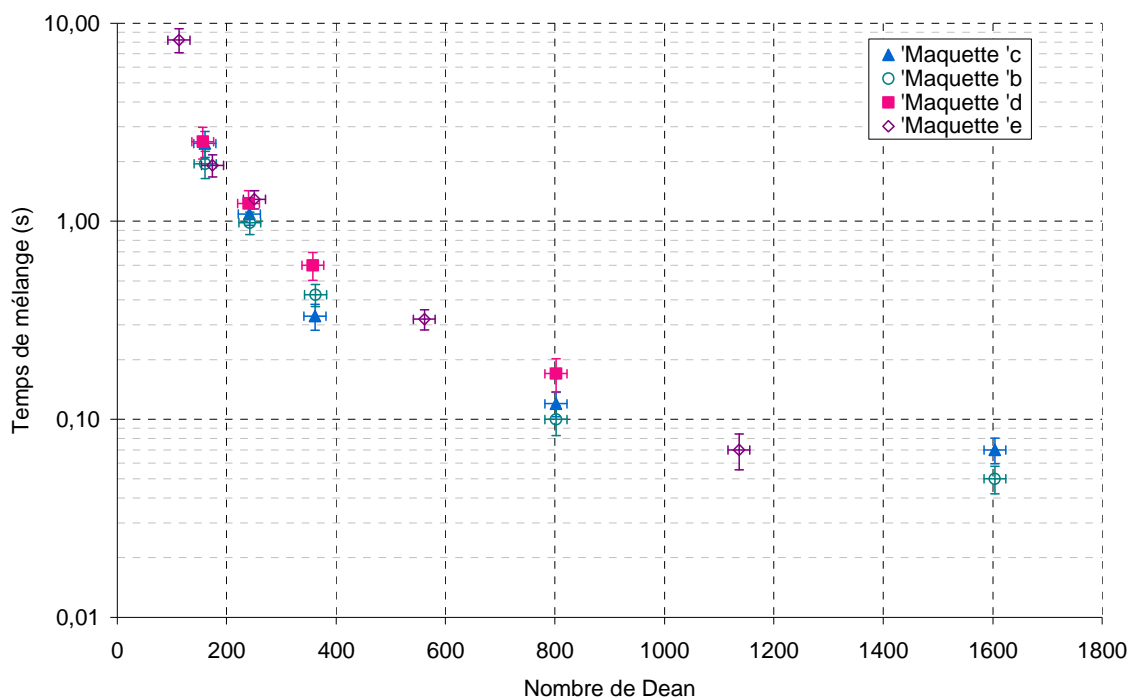


Figure IV.9 : Evolution du temps de mélange en fonction du nombre de Dean

Ces résultats confirment l'hypothèse développée précédemment puisqu'à nombre de Dean identique, les temps de mélange se regroupent quelle que soit la géométrie. Il faut donc s'attendre à ce que le rayon de courbure ait une importance quant à la rapidité du mélange, notamment lors de l'utilisation de fluides visqueux engendrant des nombres de Reynolds relativement faibles.

Pour compléter l'étude paramétrique, il est intéressant de tracer le nombre de coudes nécessaires au mélange en fonction du nombre de Dean (cf. figure IV.10).

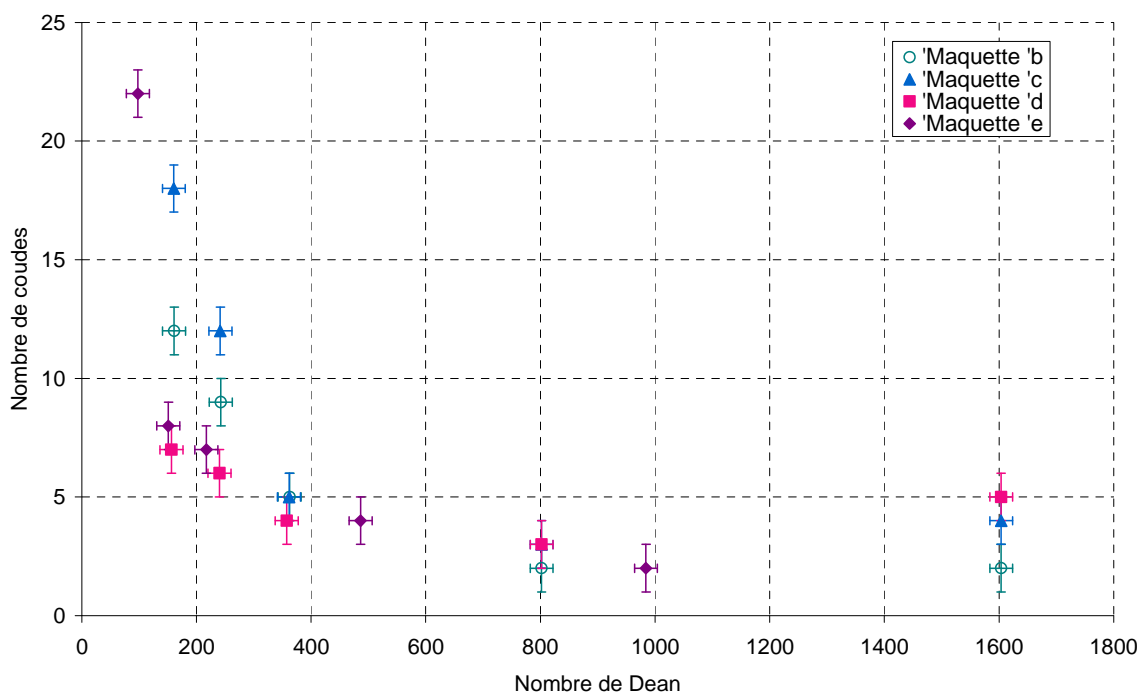


Figure IV.10 : Nombre de coudes nécessaires au mélange en fonction du nombre de Dean.

En plus du rayon de courbure, d'autres paramètres tels que l'angle des coudes (maquettes 'b' et 'c') et les longueurs droites (maquettes 'c' et 'd'), influent sur le mélange. Lorsque ces dernières augmentent de 6,94 mm (maquette 'c') à 20,28 mm (maquette 'd'), les coudes restant par ailleurs identiques, le nombre de motifs nécessaires pour homogénéiser le milieu diminue. Ce résultat signifie que le mélange, accéléré dans les coudes grâce aux boucles de recirculation, ne se produit pas uniquement à cet endroit. L'effet de persistance des vortex, mis en évidence lors de l'étude des pertes de charge, permet également l'homogénéisation des concentrations le long des longueurs droites dans lesquelles, en régime laminaire classique, seule la diffusion opère. Lorsque le nombre de Reynolds augmente, les effets liés à la turbulence, plus importants que les recirculations de Dean, comblent les différences observées à très faible Reynolds et l'influence des géométries sur le mélange est alors moins évidente.

De même, l'effet de l'angle des coudes n'est pas négligeable. Pour une longueur droite identique, lorsque l'angle augmente de 45° (maquette 'c') à 75° (maquette 'b'), le nombre de coudes nécessaires au mélange tend à diminuer. La longueur courbe d'un coude, propice au mélange, est en effet 1,6 fois plus importante dans la maquette 'b' que dans la 'c' d'où un nombre réduit de coudes dans le premier cas (diminué de 1,5 fois pour chaque condition de Reynolds).

IV.1.2.4 Synthèse

L'étude de la décoloration de l'iode par le thiosulfate de sodium pour la caractérisation du mélange global est une méthode simple à mettre en œuvre, peu coûteuse et fournissant des résultats intéressants quant à l'effet des paramètres géométriques sur les performances de mélange des maquettes. Les différences sont observées à faible nombre de Reynolds ($Re < 500$) dans des régimes d'écoulement qui peuvent être rencontrés lors de l'utilisation de fluides visqueux. Dans les cas proches des valeurs de Dean critiques, une attention particulière doit être portée au rayon de courbure qui peut engendrer de fortes disparités sur les temps de mélange. L'angle des coudes est également important et permet de diminuer le nombre de coudes nécessaires au mélange d'autant plus que le ratio entre longueur courbe et longueur droite est élevé. Enfin, la persistance des vortex de Dean permet d'augmenter les niveaux de mélange dans les longueurs droites, d'où à nouveau, une réduction du nombre de coudes pour homogénéiser le milieu. Cependant, le nombre de coudes par unité de longueur étant plus faible, la longueur de mélange reste en général plus élevée. Dans les régimes 'très' laminaires ($Re < 500$), le nombre adimensionnel pertinent caractérisant l'écoulement n'est donc plus le nombre de Reynolds mais bien le nombre de Dean.

Au-delà des Reynolds de 700, le régime est de plus en plus perturbé, estompant pour partie les phénomènes de recirculation et les différences dues aux paramètres géométriques. Dans ce cas, la géométrie n'a plus d'influence sur le mélange. Ce ne sera donc pas un des critères de performance déterminant dans ces conditions de fonctionnement.

IV.1.3 COMPORTEMENT DE DEUX LIQUIDES IMMISCIBLES

L'étude du comportement de deux liquides immiscibles dans les maquettes a été réalisée dans le cadre d'une collaboration avec F. Theron dont les travaux de thèse visent à transposer en continu un procédé d'encapsulation par polymérisation interfaciale (Theron et al., 2009). Un seul type de fluide a donc été étudié et il ne s'agit en aucun cas d'une étude exhaustive mais plutôt d'une première approche concernant les écoulements diphasiques dans les canaux ondulés. L'objectif est d'étudier le comportement d'une émulsion dans les maquettes afin d'évaluer l'évolution de la taille des gouttes. Ce paragraphe décrit brièvement le dispositif expérimental associé au banc d'essai et la méthode d'analyse utilisée pour caractériser l'écoulement, les fluides de travail et leurs caractéristiques ainsi que les conditions opératoires.

IV.1.3.1 Dispositif expérimental et analytique

Dans les travaux qui sont présentés ici, les maquettes ne sont destinées qu'au transport de l'émulsion. Contrairement aux caractérisations du mélange et du micromélange, qui ne nécessitaient pas une longueur développée importante, nous avons préféré, pour étudier l'évolution de l'émulsion dans les canaux ondulés, travailler avec les maquettes décrites dans le chapitre II dont la longueur développée totale vaut 3,5 m.

Afin de générer l'émulsion, un banc d'essai supplémentaire a été ajouté au dispositif expérimental existant afin de générer l'émulsion. Il comporte deux bacs de stockage pour chacune des phases et une colonne garnie de mélangeurs statiques SMX (Sulzer) dont le diamètre et la longueur valent respectivement 10 mm et 100 mm (cf. figure IV.11).



Figure IV.11 : Un élément des mélangeurs statiques types SMX (Sulzer)

Les échelles de taille entre les mélangeurs et les canaux (2 mm) étant très différentes, seule une fraction du débit est envoyée vers l'entrée principale de la maquette. L'émulsion peut également être de nouveau diluée dans les canaux en injectant via le circuit secondaire une des deux phases. Chaque banc est équipé de débitmètres, le débit en sortie de maquette étant contrôlé par pesée.

Enfin, l'entrée et la sortie de la maquette sont munies de robinets de prélèvement. Les échantillons sont ensuite analysés par granulométrie laser en voie liquide (Malvern 2000).

IV.1.3.2 Conditions opératoires

Les fluides utilisés pour réaliser l'émulsion sont de l'eau et du cyclohexane stabilisé avec un tensioactif, le Tween 80, à 1,5 % volumique dans la phase aqueuse. Leurs propriétés sont les suivantes :

	Cyclohexane	Eau + Tween 80 (1,5% v.)
Masse volumique ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$)	770	995
Viscosité (Pa·s)	0,0009	0,001
Tension interfaciale ($\text{mN}\cdot\text{m}^{-1}$)		3,0

Tableau IV.4 : Propriétés physico-chimiques des deux phases de l'émulsion.

Le tableau suivant résume les conditions opératoires mises en œuvre pour étudier la stabilité de l'émulsion dans les maquettes. Φ_{cyclo} correspond à la fraction volumique en cyclohexane :

	Mélangeurs statiques			Maquette 'e'				
	$F_{\text{émulsion}} (\text{L}\cdot\text{h}^{-1})$	$\Phi_{\text{cyclo}} (\%)$	Re	$F_{\text{émulsion}} (\text{L}\cdot\text{h}^{-1})$	$F_{\text{diluant}} (\text{L}\cdot\text{h}^{-1})$	$v (\text{m}\cdot\text{s}^{-1})$	Re	$\Phi_{\text{cyclo}} (\%)$
Exp n°1	291,0	25,0	10290	2,6	5,0	0,53	1060	8,6
Exp n°2	167,0	25,0	5900	2,8	0,0	0,19	380	25,0
Exp n°3	167,0	25,0	5900	14,2	0,0	0,99	1980	25,0
Exp n°4	167,0	25,0	5900	1,8	11,8	0,94	1880	3,0
Exp n°5	167,0	25,0	5900	1,0	4,0	0,35	700	5,0

Tableau IV.5 : Conditions opératoires pour l'étude du comportement d'une émulsion eau/cyclohexane dans les maquettes.

Plusieurs débits pour différentes fractions volumiques en phase dispersée ont été testés. Le protocole opératoire pour chaque expérience est le suivant :

- 1) Préparation de la solution de cyclohexane à 25% volumique ;
- 2) Mise en route des pompes alimentant les mélangeurs et réglage du débit ;
- 3) Alimentation de la maquette avec le diluant (eau distillée) pour prérégler le débit ;
- 4) Déviation d'une fraction du flux d'émulsion vers la maquette (vanne 3 voies) ;
- 5) Ajustement et vérification du débit total dans la maquette par pesée ;
- 6) En régime permanent, prélèvements en entrée et en sortie de maquette d'un échantillon d'émulsion ;
- 7) Analyse par granulométrie laser.

IV.1.3.3 Résultats expérimentaux

Avant de mettre en œuvre la réaction d'encapsulation dans les maquettes, il est nécessaire de s'assurer des conditions de transport de l'émulsion générée dans les mélangeurs statiques. La coalescence des gouttes de cyclohexane pourrait, en effet, conduire à un bouchage des canaux lors de la polymérisation. Les résultats présentés ici ne traitent que du transport de l'émulsion, le reste étant détaillé dans l'article de Theron et al. (2009) ainsi que dans ses travaux de thèse (2009).

La mesure de la granulométrie des échantillons prélevés en amont et en aval des maquettes permet de comparer la taille des gouttes de cyclohexane en sortie des mélangeurs statiques

et après avoir circulé dans les canaux ondulés. La figure IV.12 représente les courbes caractéristiques après analyse granulométrique pour les expériences n°3 et 4.

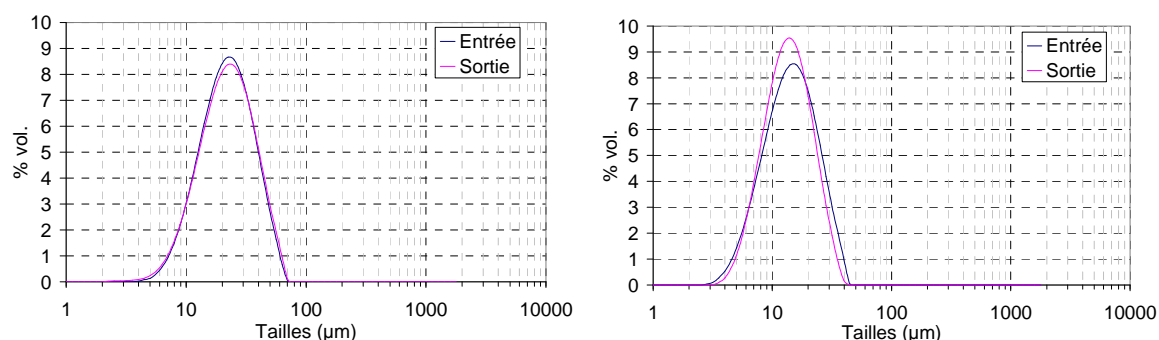


Figure IV.12 : Comparaison des résultats de granulométrie entre l'entrée et la sortie de la maquette 'e' pour les expériences n°3 (à gauche) et n°4 (à droite).

Quelle que soit la fraction volumique en cyclohexane, les courbes en entrée et sortie de maquette sont pratiquement superposées. Les maquettes ne perturbent donc pas l'écoulement diphasique et l'émulsion. Ce résultat est encourageant pour envisager la mise en œuvre de réactions liquide/liquide, et en particulier la réaction de polymérisation par encapsulation interfaciale en continu, le diamètre des capsules étant fixé avant l'entrée dans l'échangeur/réacteur par les mélangeurs statiques. Afin de compléter l'information fournie par les graphes, le tableau IV.6 donne les diamètres de Sauter en entrée et en sortie pour chaque expérience.

	d_3^2 (µm)	
	Entrée	Sortie
Exp. n°1	7,5	7,5
Exp. n°2	22,1	22,0
Exp. n°3	20,2	19,5
Exp. n°4	13,6	13,1
Exp. n°5	14,0	14,0

Tableau IV.6 : Diamètres de Sauter déterminés par granulométrie pour chaque expérience.

Quelles que soient les conditions expérimentales (taille des gouttes et concentrations en phase dispersée dans les émulsions), les diamètres de Sauter sont conservés entre l'entrée et la sortie de la maquette.

Ces expériences, visant à étudier le comportement d'un milieu diphasique liquide/liquide dans les canaux ondulés, ne constituent qu'une première approche, prometteuse, et ont été menées pour un système donné (eau/cyclohexane + tween 80) relativement stable. Les perspectives d'étude des milieux diphasiques sont nombreuses et variées mais surtout nécessaires pour envisager l'utilisation industrielle de ce type de technologie. Dans cette optique, deux post-doctorats sont en cours dans l'équipe 'intensification' du LGC. L'un porte sur la mise en œuvre de réactions exothermiques diphasiques (liquide/liquide) et l'autre sur la caractérisation des maquettes en milieu diphasique gaz/liquide.

IV.2 CARACTERISATION DES PERFORMANCES THERMIQUES

IV.2.1 DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET CONDITIONS OPERATOIRES

Pour caractériser les performances thermiques de chaque géométrie, les expériences consistent à refroidir un fluide chaud (le fluide 'procédé') avec de l'eau refroidie (le fluide 'utilité'). En plus de la plaque en plexiglas sur laquelle est gravé le canal ondulé, une plaque en aluminium est insérée entre la plaque de fermeture (plexiglas) et la plaque 'procédé'. On obtient ainsi une configuration équivalente à celle des échangeurs à plaque avec l'alternance des plaques. La figure IV.13 montre le schéma de principe des maquettes ainsi que deux photographies de la maquette 'c'.

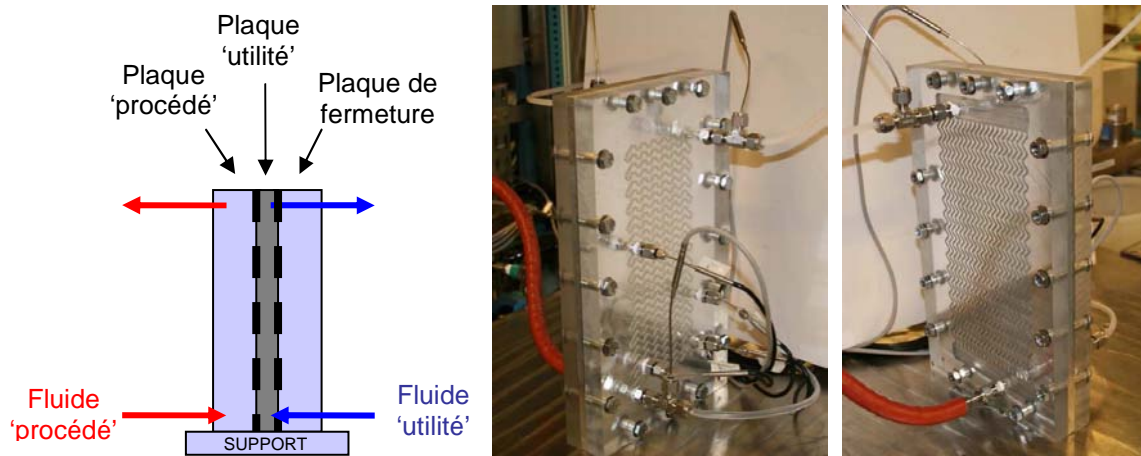


Figure IV.13 : Schéma de principe des maquettes (à gauche) et photographie de la maquette 'c' munie de la plaque d'aluminium et des sondes de température côté 'procédé' (au milieu) et côté 'utilité' (à droite).

De la même manière que pour la plaque de plexiglas, des canaux ont été gravés dans la plaque d'aluminium dans lesquels circule l'eau refroidie. Leur géométrie est similaire à celle des canaux 'utilité' de l'échangeur/réacteur en SiC décrit au chapitre II (photographie de droite). A l'entrée, le fluide de refroidissement est distribué dans 15 canaux en parallèle de section de passage carrée (2x2 mm).

Chaque plaque est équipée de sondes de température. En entrée et sortie, pour les fluides 'procédé' et 'utilité', des sondes Pt100 sont placées dans un raccord en T. Leur précision de mesure est de $\pm 0,2^{\circ}\text{C}$ et elles ne nécessitent pas d'étalonnage. Cependant, il est nécessaire d'avoir au moins 1 cm de la sonde en contact avec le fluide pour obtenir une mesure fiable. Cette condition ne pouvant être respectée le long des canaux de 2 mm de profondeur, ce sont des thermocouples (couple J classe 1) qui permettent de suivre le profil de température dans la plaque 'procédé'. Ils ont été étalonnés et leur précision de mesure vaut $\pm 1,5^{\circ}\text{C}$. Les prises de température sont symbolisées sur la figure IV.14. Le tableau IV.7 fournit les coordonnées linéiques des thermocouples.

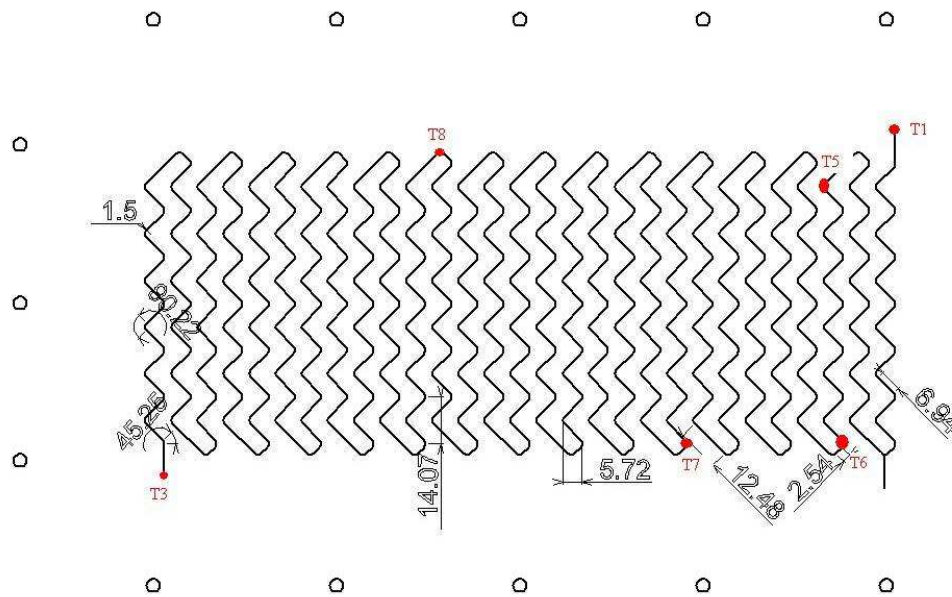


Figure IV.14 : Vue schématique de la maquette 'c' avec les prises de température (points rouges).

	Type	x (m)			
		Maq. 'b'	Maq. 'c'	Maq. 'd'	Maq. 'e'
T1 (entrée)	Pt100	0	0	0	0
T5	Thermocouple	0,26	0,26	0,26	0,26
T6		0,37	0,37	0,37	0,37
T7		1,10	1,10	0,77	1,10
T8		2,20	2,20	2,19	2,20
T3 (sortie)	Pt100	4,98	3,55	3,67	3,40

Tableau IV.7 : Coordonnées linéiques des prises de température.

L'eau refroidie est directement pompée sur le réseau tandis que le fluide 'procédé' est pompé sur le circuit principal du banc d'essai, préalablement calorifugé. Il s'agit d'eau distillée chauffée à 75°C grâce à un bain thermostaté. Les conditions expérimentales sont données dans le tableau IV.8.

	\dot{m}_u (kg·h ⁻¹)	T_u^{in} (°C)	v_u (m·s ⁻¹)	Re_u	\dot{m}_p (kg·h ⁻¹)	T_p^1 (°C)	v_p (m·s ⁻¹)	Re_p
Maq. 'b', 'c', 'd', 'e'	100	14	0,5	871	15,3	75	1,1	3780
				861	13,6		1,0	3330
				852	11,9		0,8	2890
				839	10,3		0,7	2470
				832	8,7		0,6	2070
				824	7,2		0,5	1690
				815	5,7		0,4	1320
				807	4,2		0,3	960
				797	2,8		0,2	610
								786
Maq. 'c'	20,6	15	0,10	188	15,0	76	1,1	4610
	30,6		0,14	269				4360
	40,9		0,19	351				4230
	49,8		0,23	421				4150
	60,7		0,28	507				4060
	71,0		0,33	586				3990
	80,2		0,37	658				3930
	89,3		0,41	727				3890
	99,6		0,46	806				3840
	129,5		0,60	1036				3730

Tableau IV.8 : Conditions opératoires pour la caractérisation des performances thermiques.

Les expériences consistant à faire varier le débit du fluide utilité dans la maquette 'c' permettent de déterminer la résistance thermique du côté refroidissement afin notamment de savoir si elle est négligeable à 100 kg·h⁻¹. Enfin le protocole opératoire suivi pour chaque campagne d'expérimentations est le suivant :

- 1) Mise en route du fluide de refroidissement à 100 kg·h⁻¹ ;
- 2) Mise en route du fluide chaud (75°C) au débit souhaité ;
- 3) Stabilisation et acquisition des températures (15 min) ;
- 4) Répétition des opérations 2) et 3) pour chaque débit de travail ;
- 5) Enregistrement et exploitation des données (débits, températures).

IV.2.2 RESULTATS EXPERIMENTAUX

Les résultats expérimentaux des caractérisations thermiques concernent l'évolution des coefficients de transfert de chaleur globaux en fonction des débits côté 'procédé' mais également côté 'utilité'. Ce dernier permet d'évaluer la résistance thermique du fluide utilité et d'en déduire l'évolution du nombre de Nusselt en fonction du Reynolds pour le canal 'procédé'.

IV.2.2.1 Coefficient de transfert de chaleur global

Les expériences réalisées pour la caractérisation des performances thermiques permettent d'accéder aux températures mesurées en entrée et sortie de chaque plaque et le

long du canal ondulé (côté 'procédé'). A partir de la différence de température entre deux positions, la quantité de chaleur, Q , est facilement évaluée :

$$Q = \dot{m} \cdot C_p \cdot \Delta T \quad (\text{IV-8})$$

Le coefficient de transfert de chaleur global est alors calculé par la relation suivante :

$$U = \frac{Q}{A \cdot \Delta T_{ml}} \quad (\text{IV-9})$$

A , correspond à l'aire d'échange. Nous avons décidé de prendre comme référence la surface de fluide en contact avec la plaque de refroidissement, soit l'aire d'une des quatre faces du canal 'procédé' : la face supérieure fermée par la plaque d'aluminium. Elle est représentée sur la figure IV.15 (face bleue).

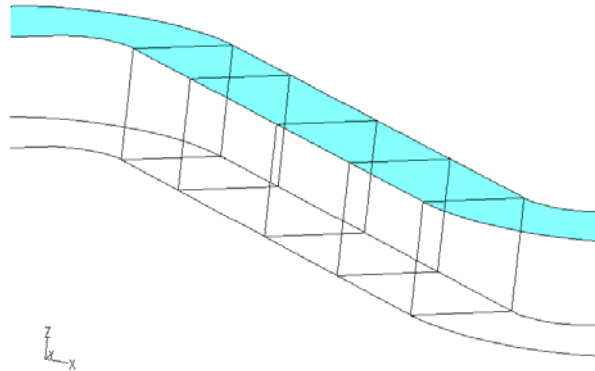


Figure IV.15 : Représentation schématique d'une portion de canal. L'aire d'échange correspond à la surface bleuée.

ΔT_{ml} est la moyenne logarithmique de température définie par :

$$\Delta T_{ml} = \frac{(T_p^{in} - T_u^{in}) - (T_p^{out} - T_u^{out})}{\ln \left(\frac{T_p^{in} - T_u^{in}}{T_p^{out} - T_u^{out}} \right)} \quad (\text{IV-10})$$

T_p^{in} ; T_u^{in} ; T_p^{out} ; T_u^{out} sont respectivement les températures d'entrée et de sortie du fluide 'procédé' et du fluide 'utilité'.

La figure IV.16 représente les profils de température relevés sur chaque maquette en fonction de la position du thermocouple pour un débit 'procédé' de $10 \text{ kg}\cdot\text{h}^{-1}$ et un débit de refroidissement de $100 \text{ kg}\cdot\text{h}^{-1}$. x , correspond à l'abscisse du thermocouple et L à la longueur totale développée du canal.

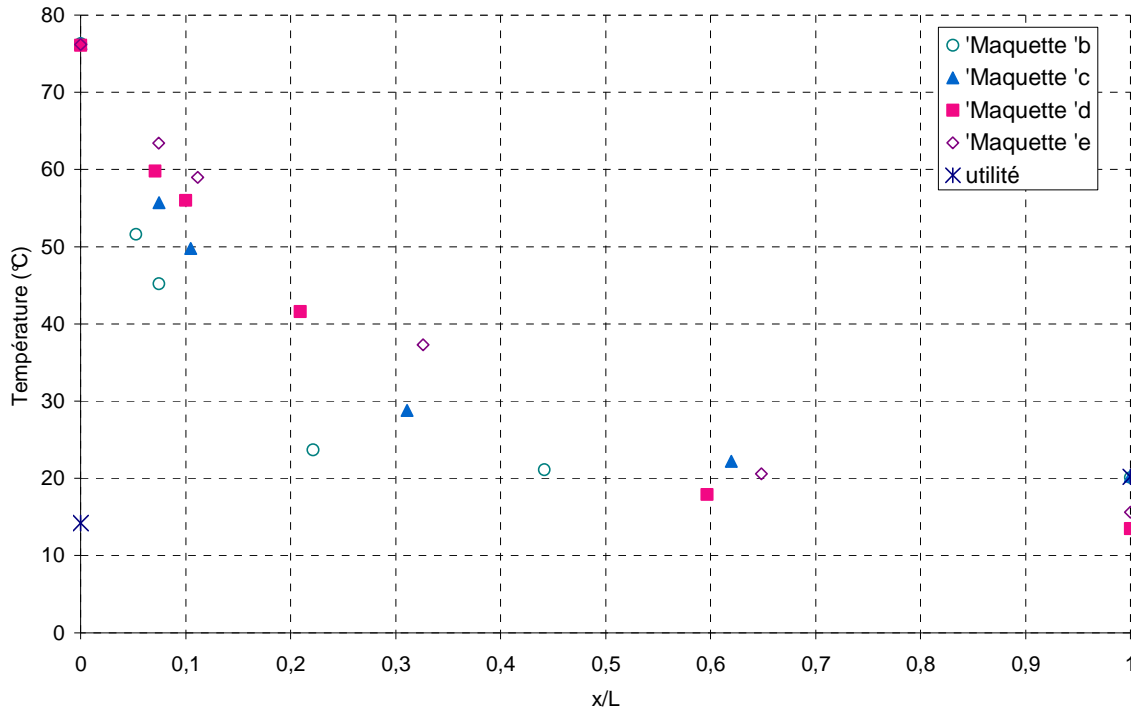


Figure IV.16 : Profils de température pour $\dot{m}_p = 10 \text{ kg}\cdot\text{h}^{-1}$ et $\dot{m}_u = 100 \text{ kg}\cdot\text{h}^{-1}$.

Les profils de température mettent en évidence le fait que toute la chaleur a été échangée à environ 40% de la longueur totale développée pour la géométrie 'b' et 60% pour les autres. Cela signifie qu'il y a un pincement en température. Aussi, il est nécessaire de travailler avec les mesures de température situées en amont afin de ne pas sous-estimer le niveau d'échange effectif.

Nous avons donc choisi d'effectuer les calculs avec les températures entre l'entrée du canal 'procédé' et le 1^{er} thermocouple (T5).

Dans l'idéal, afin de caractériser le coefficient de transfert de chaleur côté 'procédé', i.e. pour le canal ondulé, la plaque de refroidissement (ou plaque 'utilité') doit être alimentée par un débit suffisamment important pour pouvoir négliger les limitations de transfert de ce côté. En effet, le coefficient de transfert global est défini par :

$$\frac{1}{U \cdot A} = \frac{1}{h_p \cdot A_p} + \frac{e}{\lambda \cdot A_m} + \frac{1}{h_u \cdot A_u} \quad (\text{IV-11})$$

h_p et h_u sont respectivement les coefficients de transfert locaux côté 'procédé' et 'utilité', e est l'épaisseur de la plaque entre les deux fluides et λ , sa conductivité thermique.

Lorsque le transfert de chaleur n'est pas limité côté 'utilité', le coefficient local h_u est tellement grand (facteur 10 par rapport à h_p) que le terme $1/h_u$ devient négligeable dans l'équation (IV-11). Ainsi la mesure expérimentale de température qui permet de déterminer le coefficient global de transfert de chaleur mène naturellement au coefficient local côté 'procédé'. On en déduit alors le nombre de Nusselt défini par :

$$Nu = \frac{h_p \cdot d_h}{\lambda} \quad (IV-12)$$

Sur le banc d'essai, le débit maximal du fluide de refroidissement ne peut pas excéder $130 \text{ kg}\cdot\text{h}^{-1}$. Pour savoir si ce débit est suffisamment important pour négliger le transfert côté 'utilité', il est intéressant de tracer l'évolution du coefficient de transfert global en fonction du nombre de Reynolds côté 'utilité' (cf. figure IV.17).

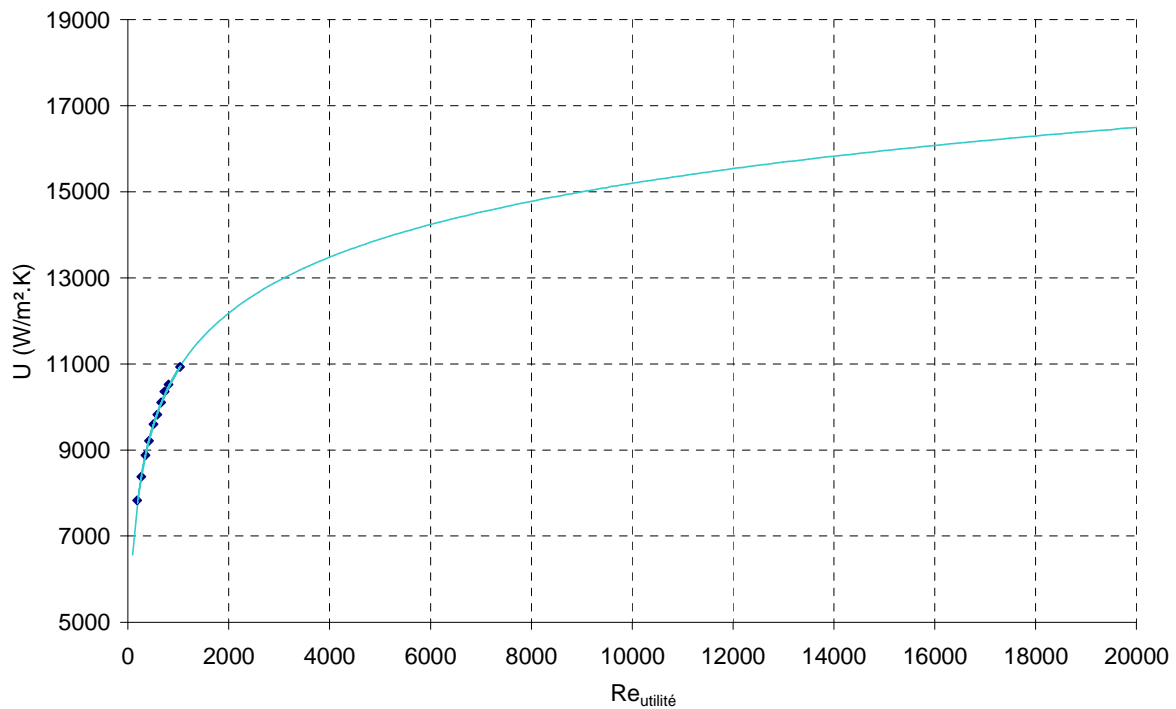


Figure IV.17 : Evolution du coefficient global de transfert de chaleur en fonction du Reynolds côté 'utilité' pour $\dot{m}_p = 15 \text{ kg}\cdot\text{h}^{-1}$.

Il s'avère malheureusement que le débit disponible en eau refroidie n'est pas suffisant pour considérer que le transfert n'est pas limitant côté 'utilité'. Cette limitation technologique nous empêche donc d'évaluer les nombres de Nusselt du côté 'procédé' pour chaque maquette. Afin d'y remédier, une approximation peut être faite. La courbe bleue, tracée sur la figure IV.17, corrèle les points expérimentaux établis en faisant varier le débit de l'eau de refroidissement. Son expression est la suivante avec un coefficient de détermination de 0,9978 :

$$U = 1873,6 \cdot \ln(\text{Re}) - 2059,6 \quad (IV-13)$$

L'hypothèse consiste à considérer l'établissement du palier, i.e. lorsque le débit d'utilité n'a plus d'influence, à $U = 17000 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$. $1/h_u$ est alors négligeable et on en déduit que :

$$\frac{1}{17000} = \frac{1}{h_p} + \frac{e}{\lambda} \cdot \frac{A_p}{A_m} \quad (IV-14)$$

pour $\dot{m}_p = 15 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$.

Pour $\dot{m}_u = 100 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$ et $\dot{m}_p = 15 \text{ kg} \cdot \text{h}^{-1}$, le coefficient global de transfert thermique, U , vaut $10400 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$, h_u vaut alors :

$$\frac{1}{h_u} \cdot \frac{A_p}{A_u} = \frac{1}{U} - \frac{1}{h_p} - \frac{e}{\lambda} \cdot \frac{A_p}{A_m} = \frac{1}{U} - \frac{1}{17000} = \frac{1}{10400} - \frac{1}{17000}$$

Soit

$$h_u \cdot \frac{A_u}{A_p} = 27000 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$$

Les conditions sur le fluide 'utilité' étant identiques pour chaque campagne d'expériences, cette valeur sera retenue pour évaluer le nombre de Nusselt dans chaque géométrie côté 'procédé'. L'erreur engendrée par cette hypothèse est identique pour toutes les maquettes et n'interfère pas dans la comparaison des géométries entre elles. Il faudra cependant rester prudent vis-à-vis des valeurs purement quantitatives.

IV.2.2.2 Etude paramétrique

a. Effet de la géométrie

A partir des relevés de température et sous l'hypothèse développée précédemment pour le calcul du nombre de Nusselt, l'influence des paramètres géométriques (rayon de courbure, longueur droite et angle des coudes) sur les performances thermiques est étudiée. Un facteur d'intensification est défini. Il prend en compte le coefficient de transfert global mais également la compacité de l'appareil et est noté,

$$\frac{U \cdot A}{V} \text{ (W} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}\text{)}$$

A correspond à la surface d'échange de la face en contact avec la plaque de refroidissement et V , au volume de fluide réactionnel mis en jeu. La figure IV.18 représente l'évolution du facteur d'intensification avec le débit.

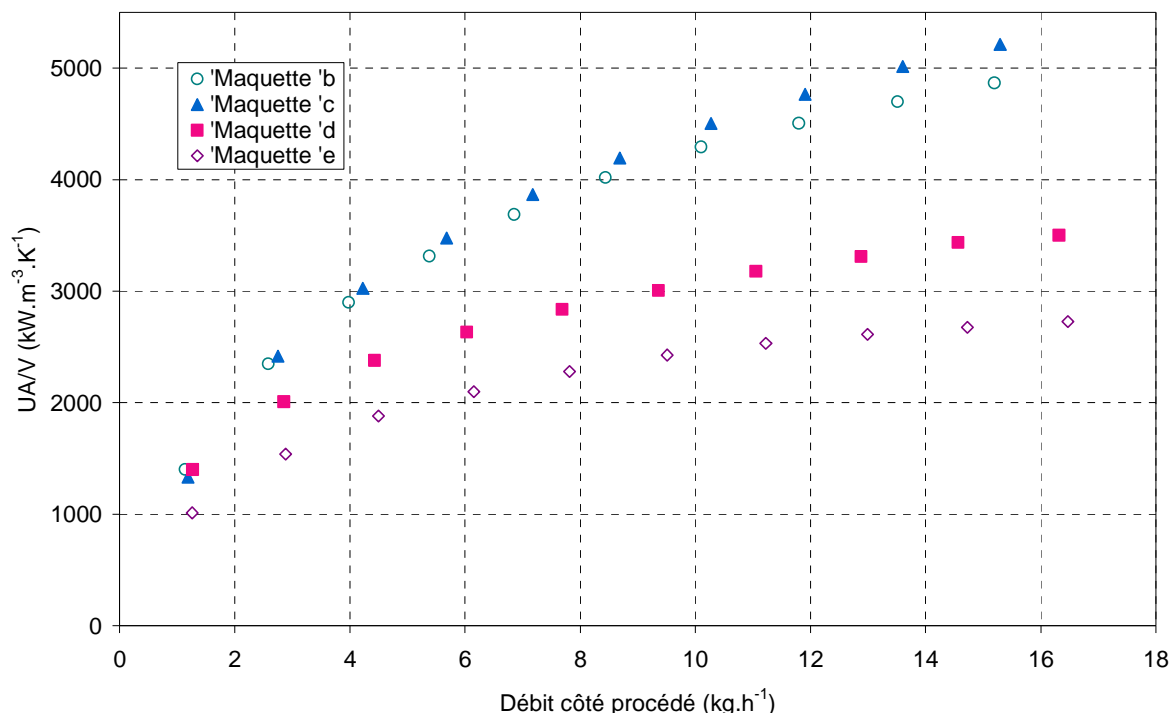


Figure IV.18 : Evolution du facteur d'intensification avec le débit côté 'procédé' pour $\dot{m}_u = 100 \text{ kg.h}^{-1}$.

La longueur droite entre deux coudes semble être le paramètre le plus influant sur les performances thermiques puisque l'on observe un saut important du facteur d'intensification entre la maquette 'c' ($L_d = 6,94 \text{ mm}$) et la maquette 'd' ($L_d = 20,28 \text{ mm}$). La longueur développée des maquettes est équivalente dans les deux cas et la modification des longueurs droites fait donc varier le nombre de coudes par unité de longueur (106 pour la maquette 'c' contre 44 pour la maquette 'd'). Le rapport entre les deux vaut 2,5 et ne correspond pas à l'écart observé entre les coefficients de transfert, constant selon le débit et plutôt égal à 2. Ainsi comme pour les pertes de charge, on peut supposer que le transfert se poursuit dans les longueurs droites et ce d'autant plus que la longueur de persistance est importante.

Par ailleurs, l'angle des coudes ne semble avoir aucune incidence sur les performances thermiques. Même si le ratio entre longueur courbe et longueur droite est 1,6 fois plus important dans la maquette 'b' que dans la maquette 'c', il semblerait que ce soit le nombre de coudes par mètre qui pilote le transfert thermique (106 coudes/m dans la maquette 'c' et 90 coudes/m dans la maquette 'b').

Enfin, l'influence du rayon de courbure n'est pas négligeable. Pour un débit constant, les performances chutent lorsqu'il passe de 1,5 mm (maquette 'd') à 4 mm (maquette 'e'). Deux effets s'additionnent : la diminution du nombre de coudes par unité de longueur (de 44 à 20 coudes/m) mais également la diminution du nombre de Dean et donc de l'intensité des vortex de recirculations. Ce phénomène est illustré sur la figure IV.19 sur laquelle est tracée l'évolution du nombre de Nusselt en fonction du nombre de Dean.

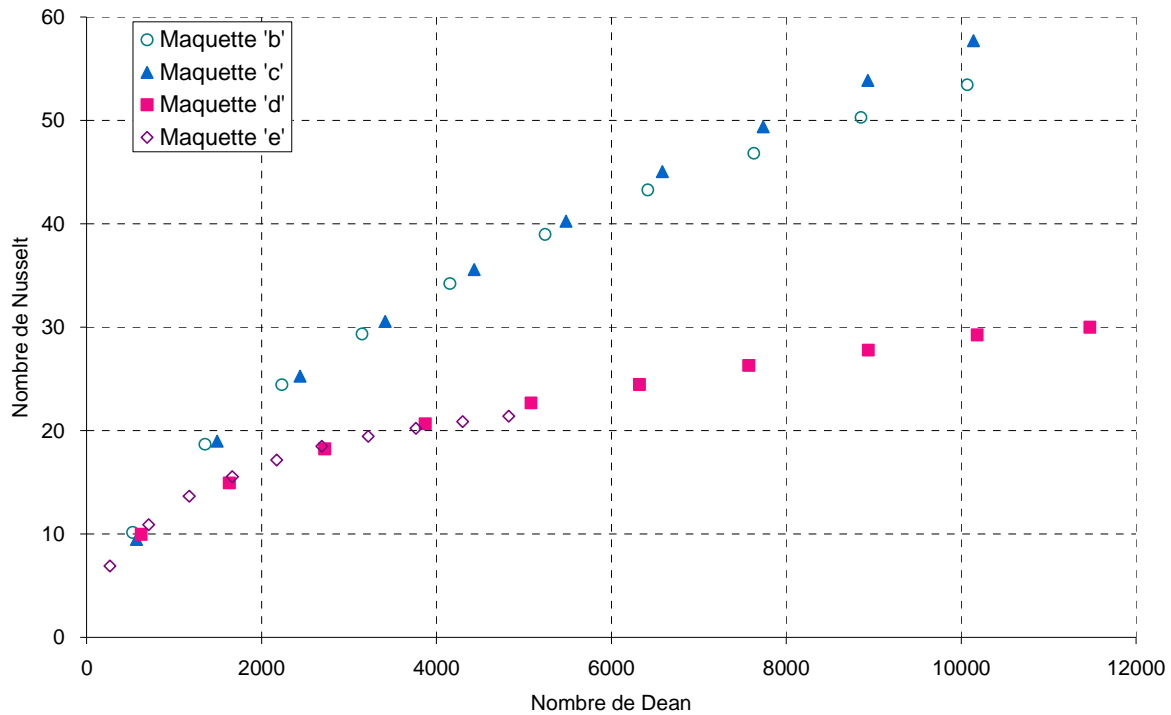


Figure IV.19 : Evolution du nombre de Nusselt avec le nombre de Dean.

L'influence de l'angle des coudes et des longueurs droites est évidemment inchangée. Ce qui n'est pas le cas pour la courbe caractéristique de la maquette 'e'. Elle est en effet maintenant confondue avec celle de la maquette 'd' révélant le fait que le nombre de Dean est bien le nombre adimensionnel caractéristique lorsque le rayon de courbure varie.

b. Etablissement de corrélations

La figure IV.20 compare les lois de Nusselt obtenues expérimentalement avec deux corrélations proposées par Cheng & Akiyama (1970), (équation IV-17) ainsi que par Mori et al. (1971), (équation IV-18), qui sont rappelées ci-dessous, Nu_0 correspond au nombre de Nusselt dans un tube droit de longueur développée et de diamètre hydraulique équivalents :

$$\frac{Nu}{Nu_0} = 0,182 \cdot De^{0,5} \cdot Pr^{0,25} \quad (IV-15)$$

La corrélation (IV-17) a été établie expérimentalement avec de l'air circulant dans un tube carré dont le rapport rayon de courbure sur diamètre hydraulique (R_c/d_h) vaut 13. La section d'essai représente un coude unique.

$$\frac{Nu}{Nu_0} = 0,0208 \cdot De^{4/5} \cdot \left(1 + 0,287 \cdot De^{-1/5}\right) \quad (IV-16)$$

La corrélation (IV-18) a été établie numériquement pour un coude de section rectangulaire dont le ratio R_c/d_h est très supérieur à 1. Le fluide considéré est de l'air ($Pr=0,7$).

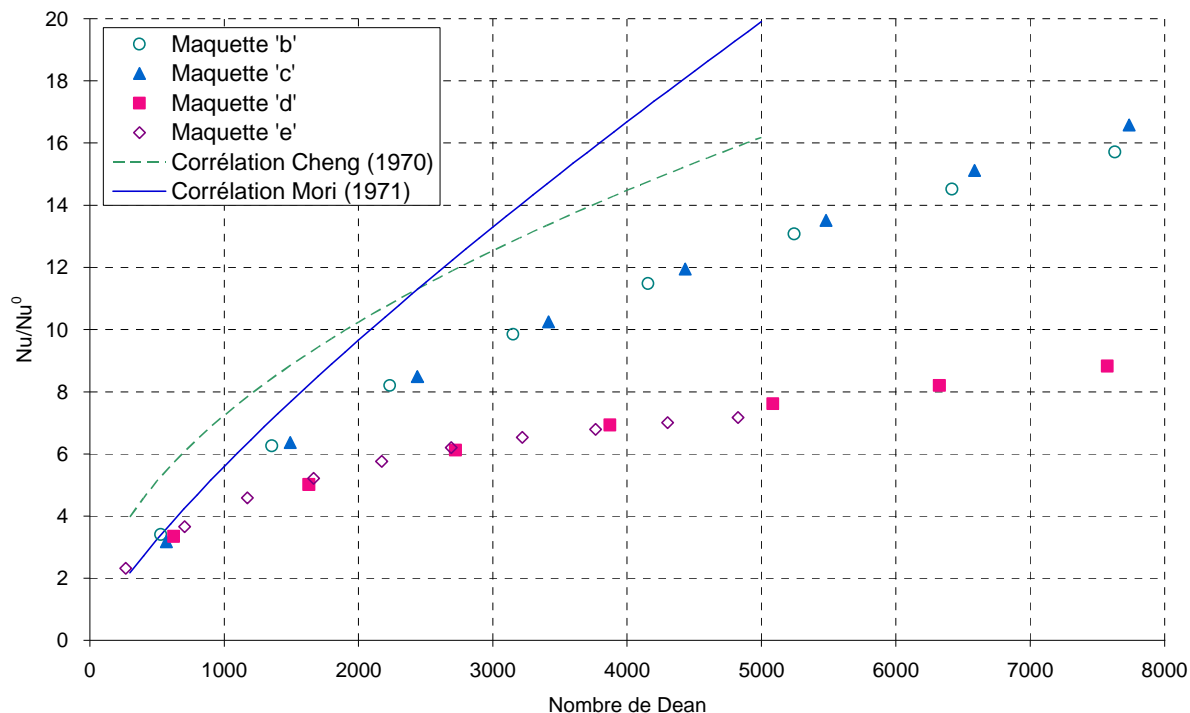


Figure IV.20 : Comparaison des résultats expérimentaux du nombre de Nusselt en fonction du nombre de Dean avec les corrélations de la littérature.

Les résultats expérimentaux diffèrent au maximum (maquettes 'd' et 'e') d'un facteur 2 par rapport aux corrélations de la littérature. Plusieurs raisons en sont à l'origine. Tout d'abord, nous rappelons que la méthode de détermination des nombres de Nusselt expérimentaux comporte des incertitudes quant aux valeurs absolues des Nusselt qui peuvent se répercuter ici. En outre, les corrélations de Cheng et de Mori ont été établies dans un coude unique de 180° de révolution. Nous avons montré précédemment que l'enchaînement des coudes avait une importance sur les performances, de même que leur géométrie. Il n'est donc pas étonnant d'obtenir de tels écarts avec la littérature.

Par conséquent, nous avons décidé d'établir nos propres corrélations en fonction du nombre de Dean. Les courbes caractéristiques pour chaque maquette sont représentées sur la figure IV.19. Celles des maquettes 'b' et 'c' sont superposées, la corrélation sera donc identique. Il en est de même pour les maquettes 'd' et 'e'. Les corrélations sont données dans le tableau IV.9

	Maquette 'b' et 'c'	Maquette 'c'
Corrélation	$\frac{Nu}{Pr^{0,33}} = 0,13 \cdot De^{0,63}$	$\frac{Nu}{Pr^{0,33}} = 0,50 \cdot De^{0,41}$
R²	0,9953	0,9881

Tableau IV.9 : Corrélations expérimentales reliant le nombre de Nusselt au nombre de Dean.

IV.2.2.3 Synthèse

L'étude des performances thermiques complète les tendances observées lors des caractérisations précédentes. L'angle des coudes, qui impactait les pertes de charge et le micromélange, n'a pas d'influence sur les performances thermiques. Les géométries 'b' et 'c' possèdent donc les mêmes caractéristiques.

La comparaison des performances des maquettes 'd' et 'e', i.e. lorsque le rayon de courbure varie de 1,5 à 4 mm, indique que les performances dépendent du nombre de Dean. En effet, les différences observées à Reynolds constant disparaissent lorsque le paramètre retenu est le nombre de Dean.

Enfin, l'augmentation des longueurs droites entre les coudes abaisse les performances thermiques. Il s'agit en fait de l'influence du nombre de coudes par unité de longueur qui n'est pas négligeable. Lorsqu'il passe de 106 coudes/mètre à 44 coudes/mètre, les performances thermiques sont divisées par 2.

La comparaison avec les corrélations issues de la littérature et représentant le nombre de Nusselt en fonction du nombre de Dean révèle des écarts importants avec nos résultats expérimentaux. Il est probable que l'on puisse invoquer ici un effet des paramètres géométriques et notamment de l'enchaînement de plusieurs coudes, sur les performances de transfert thermique. Rappelons que ces effets n'ont pas été pris en compte ni par Cheng & Akiyama (1970) ni par Mori et al. (1971).

Au final, nous avons établi nos propres corrélations :

$$\frac{Nu}{Pr^{0,33}} = 0,13 \cdot De^{0,63} \text{ valable pour les maquettes 'b' et 'c'} \quad (IV-17)$$

$$\frac{Nu}{Pr^{0,33}} = 0,50 \cdot De^{0,41} \text{ valable pour les maquettes 'd' et 'e'} \quad (IV-18)$$

Comme prévu, les paramètres géométriques renforçant le transfert de chaleur, provoquent la hausse des pertes de charge. Il est donc nécessaire de coupler les résultats entre eux afin d'en déduire la géométrie la plus adéquate en fonction de l'utilisation requise. Ce travail fait l'objet du chapitre V.

IV.3 SYNTHÈSE DE L'ÉTUDE THERMO-HYDRAULIQUE

Pour compléter les travaux du chapitre III qui caractérisaient les distributions de temps de séjour et les pertes de charge dans chaque géométrie, il était intéressant de connaître les performances des canaux ondulés en termes de transferts de matière et de chaleur. L'objet de ce chapitre était donc de présenter les résultats expérimentaux concernant les caractéristiques de mélange et les coefficients de transfert de chaleur globaux dans les maquettes en fonction des paramètres géométriques.

Dans les appareils destinés à accueillir des synthèses chimiques, le mélange est une étape essentielle, à ne pas négliger pour espérer de bons résultats en termes de sélectivité et de rendements mais également pour améliorer la sécurité du procédé. Les étapes de mélange se déroulent à différentes échelles et deux d'entre elles ont été caractérisées dans ces travaux, le macromélange et le micromélange (en deçà de l'échelle de Kolmogoroff). La caractérisation du mélange global fait appel à une méthode visuelle de décoloration, aisée à mettre en œuvre. Excepté à très faible Reynolds, les résultats expérimentaux sont relativement homogènes quelle que soit la géométrie : les temps de mélange sont tous identiques. Dans ces conditions de travail, la question du mélange ne sera donc pas déterminante quant au choix du dessin optimal. Ce n'est plus le cas lorsque le régime d'écoulement se rapproche des valeurs du nombre de Dean critique autour desquelles un saut d'efficacité de mélange est observé selon que le régime d'écoulement se trouve au-dessous ou au-dessus de ce seuil. Ainsi, et notamment lors de la mise en œuvre de fluides visqueux, une attention plus particulière doit être portée au rayon de courbure des coudes du canal ondulé dont le rapport avec le diamètre hydraulique déterminera le nombre de Dean qui idéalement devra dépasser la valeur critique (150 à 250).

La méthode employée pour caractériser le micromélange dans les maquettes, même si elle est devenue désormais classique, est plus difficile à mettre en œuvre que celle pour le mélange global. Nos expériences ne constituent qu'une première approche et ont été réalisées dans l'objectif de comparer les géométries entre elles. Les résultats expérimentaux soulignent l'influence de l'injection et notamment de sa position par rapport au canal principal qui semble être le paramètre clé. Une étude plus approfondie pourrait quantifier ce résultat mais également faire intervenir un modèle afin de convertir les indices de ségrégation, qui dépendent des conditions opératoires, en temps de micromélange. Ces derniers sont intéressants pour comparer les canaux structurés avec d'autres technologies. Faute de temps, ce travail n'a pas pu être réalisé.

Enfin pour compléter l'étude hydrodynamique, des premiers tests caractérisant le comportement d'un écoulement diphasique liquide/liquide ont été mis en œuvre dans les maquettes. L'objectif était d'étudier l'impact des structures coudées sur une émulsion générée en aval du canal par des mélangeurs statiques. Les expériences réalisées pour diverses conditions de débit, de rétention en phase dispersée et de taille de gouttes ont montré que la granulométrie de l'émulsion était conservée et donc qu'aucun phénomène de coalescence ne se produisait à l'intérieur des maquettes. Ces résultats ne concernent qu'un système donné et ont permis de mettre en œuvre avec succès, la réaction en continu de polymérisation interfaciale associée. Evidemment, cette étude préliminaire doit maintenant

être complétée pour élargir la gamme d'utilisation des maquettes en liquide/liquide mais également en gaz/liquide.

Finalement, mis à part pour les régimes d'écoulement laminaires à bas Reynolds ($Re < 500$), les transferts de matière sont peu affectés par la structure du canal. Le seul paramètre limitant concerne le ratio entre rayon de courbure et diamètre hydraulique et en fonction de l'utilisation (fluides visqueux par exemple), certaines précautions doivent être prises lorsque les valeurs de nombre de Dean sont de l'ordre de celles du seuil critique (150 à 250).

Les transferts de chaleur, quant à eux, sont beaucoup plus sensibles à la géométrie des canaux. Même si l'angle des coudes, qui contrairement aux DTS et au micromélange, n'a aucune influence sur les performances thermiques, il n'en est pas de même avec le rayon de courbure ou les longueurs droites. Lorsque la distance entre deux coudes augmente de 6,94 mm à 20,28 mm, le transfert de chaleur est moins efficace (diminution pouvant aller jusqu'à un facteur 2). C'est en fait l'effet du nombre de coudes par unité de longueur qui chute de 106 à 44 coudes/mètre. Cependant, la baisse des performances (facteur 2) n'est pas proportionnelle à celle du nombre de coudes par mètre (facteur 2,5), les longueurs droites doivent donc contribuer elles aussi à l'échange thermique. Il s'agit du phénomène de persistance des boucles de recirculation, rencontré et mis en évidence lors de la caractérisation des pertes de charge. Aussi, il doit certainement exister une longueur pour laquelle l'intensification du transfert de chaleur due à la persistance des recirculations comble la perte engendrée par la diminution du nombre de coudes par mètre.

L'influence du rayon de courbure sur les performances thermiques est également notable. Lorsqu'il augmente de 1,5 mm à 4 mm, le transfert de chaleur décroît de 30% si l'on conserve le nombre de Reynolds. Cependant, si l'on caractérise le régime d'écoulement par le nombre de Dean, on s'aperçoit alors que le rayon de courbure n'a plus aucune influence sur le nombre de Nusselt. Comme pour le mélange, le paramètre pertinent pour caractériser les performances thermiques est donc le nombre de Dean. Deux corrélations reliant le nombre de Nusselt au nombre de Dean et établies dans un coude unique de 180° de révolution sont disponibles dans la littérature (*Cheng & Akiyama, 1970* et *Mori et al., 1971*). Elles diffèrent fortement (facteur 2) des courbes expérimentales. Mais ce résultat n'est pas surprenant car les conditions opératoires ne sont pas identiques : enchaînement de plusieurs coudes dans les maquettes, hypothèse de calcul pour déterminer expérimentalement le nombre de Nusselt, ratios entre rayon de courbure et diamètre hydraulique très supérieur à 1 dans la littérature ce qui n'est pas notre cas ($0,75 \leq R_c/d_h \leq 2$). Par conséquent, nous avons établi nos propres corrélations :

$$\frac{Nu}{Pr^{0,33}} = 0,13 \cdot De^{0,63} \quad (IV-19)$$

L'angle des coudes n'ayant aucune influence sur les performances thermiques, la corrélation (IV-19) est valable pour les maquettes 'b' ($\theta=75^\circ$) et 'c' ($\theta=45^\circ$). Lorsque le nombre de coudes par unité de longueur chute de 106 (maquette 'c') à 44 (maquette 'd'), les performances peuvent être jusqu'à divisées par 2. Dans ce cas une nouvelle corrélation est

établie (IV-20). Elle est commune aux maquettes 'd' et 'e' puisqu'entre elles, seul le rayon de courbure varie.

$$\frac{Nu}{Pr^{0,33}} = 0,50 \cdot De^{0,41} \quad (IV-20)$$

Finalement, la synthèse et la confrontation des résultats des deux chapitres de caractérisations doivent nous permettre de déterminer des tendances d'optimisation et de faire un choix sur la géométrie la plus performante vis-à-vis des contraintes des cahiers des charges. C'est l'objet du chapitre V. Mis à part quelques cas exceptionnels qui ont été recensés, le mélange et les DTS ne sont pas des facteurs limitants dans le choix de la géométrie de canaux ondulés. Ce n'est ni le cas des pertes de charge ni de la thermique. Les corrélations correspondantes sont essentielles pour envisager une procédure d'extrapolation. Les prémices de cette étape clé pour le développement industriel font l'objet du chapitre VI.

CHAPITRE V OPTIMISATION ET ETUDE DE SENSIBILITE DES PARAMETRES GEOMETRIQUES

Les deux chapitres précédents ont été consacrés à l'étude de l'influence des paramètres géométriques des canaux ondulés sur chaque critère de performance thermo-hydraulique. Les tendances ne vont évidemment pas toujours dans le même sens et la géométrie la plus performante diffère selon la caractéristique considérée. Ainsi, les maquettes les plus efficaces en termes de transferts de matière, de chaleur et/ou de quantité de mouvement sont souvent celles qui génèrent le plus d'instantanés dans l'écoulement. Les pertes de charge dans ces motifs ne sont donc pas négligeables et il est alors nécessaire de confronter les résultats entre eux pour trouver l'optimum de travail. Celui-ci dépendra entre autres du cahier des charges spécifié pour l'utilisation finale et du degré de polyvalence recherché pour l'appareil global.

L'objectif de ce chapitre est dans un premier temps de synthétiser l'ensemble des résultats, non plus par type de caractérisation mais selon les critères géométriques, puis de confronter entre elles les performances de chacune des géométries. La constitution de cette base de données a pour objectif d'aider à la conception des plaques réactionnelles, insérées dans les échangeurs/réacteurs, en choisissant les paramètres géométriques caractéristiques des canaux ondulés les plus adaptés vis-à-vis des contraintes d'utilisation.

Afin d'illustrer ces propos, la seconde partie de ce chapitre s'attarde sur deux cas modèles relatifs à la mise en œuvre de synthèses chimiques dans les canaux ondulés. Le premier concerne une application industrielle dont les contraintes sont spécifiques en termes de cibles de production et de réaction. Il s'agit du cahier des charges défini pour le projet ANR RAPIC évoqué dans le chapitre II. Le second cas compare, pour une chimie de référence, les performances atteintes dans ces géométries avec celles des procédés discontinus classiques.

V.1 COMPILATION DES RESULTATS

Après avoir étudié l'influence des géométries sur chaque caractéristique (DTS, pertes de charge, micromélange, mélange global et transferts thermiques), il est intéressant de compiler les résultats par paramètre géométrique (rayon de courbure, longueur droite et angle des coudes) afin d'avoir une vision plus globale des performances des maquettes. Pour cela, le tableau V.1 synthétise l'effet des paramètres du dessin des canaux ondulés sur les grandeurs spécifiques à chaque caractéristique.

	DTS	Pertes de charge		Micromélange	Mélange global	Thermique
	N_{bacs}/L	$\Delta P/L$ ($\text{bar}\cdot\text{m}^{-1}$)	$\Delta P/\text{coude}$ (bar)	X_s	t_m (s)	UA/V ($\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$)
Rayon de courbure, R_c (de 1,5 à 4 mm)	↗	↗	↗	?	↗	↘
Longueur droite, L_d (de 6,94 à 20,28 mm)	↘	↘	↗	≈	≈	↘
Angle des coudes, θ (de 45 à 75°)	↗	↗	↗	↗	≈	≈

Tableau V.1 : Récapitulatif de l'influence des paramètres sur les performances thermo-hydrauliques pour une longueur de maquette équivalente et à iso-Reynolds.

L'augmentation du rayon de courbure de 1,5 à 4 mm (maquettes 'd' et 'e') induit une augmentation du temps de mélange et une diminution du coefficient de transfert de chaleur global. On s'attend donc à une diminution des transferts de chaleur et de matière lorsque que l'on compare ces deux géométries à iso-Reynolds. Il s'agit en fait de l'effet des vortex de Dean puisqu'à iso-Dean les performances se rejoignent. A contrario les pertes de charge et le nombre de bacs équivalent augmentent lorsque le rayon de courbure augmente. C'est le ratio entre longueur courbe et longueur droite qui intervient cette fois-ci. La longueur sur laquelle sont générées les boucles de recirculation et donc le chaos sont plus importants dans le cas du rayon de courbure égal à 4 mm d'où une augmentation des pertes de charge par coude et par unité de longueur. Cet effet intervient également sur les résultats des DTS mais il n'est pas le seul. En effet, dans la maquette 'd', les recirculations axiales en aval de chaque coude sont plus importantes et intenses que dans la maquette 'e', favorisant donc le mélange axial et diminuant le nombre de bacs équivalent par unité de longueur mais par coude également.

L'augmentation de l'angle des coudes de 45 à 75° provoque le même effet sur le ratio entre longueur courbe et longueur droite. Ainsi les mêmes tendances sont observées : augmentation du nombre de bacs et des pertes de charge par unité de longueur et par coude. Les transferts de matière et de chaleur restent quant à eux quasiment identiques même si une légère diminution du nombre de coudes nécessaire au mélange est observée.

Enfin, l'augmentation des longueurs droites entre chaque coude (de 6,94 à 20,28 mm), en diminuant le nombre de coudes par mètre, implique logiquement la diminution des performances thermiques, du nombre de bacs et des pertes de charge par unité de longueur. Les coudes restant identiques, le micromélange est constant mais la perte de charge par coude augmente, du fait de la persistance des boucles de recirculation dans les longueurs droites.

L'évolution des transferts de matière et de chaleur suivent donc logiquement les mêmes tendances lorsqu'un paramètre géométrique varie. Ce n'est plus le cas lorsqu'ils sont comparés aux pertes de charge. Ainsi, il est intéressant de s'attarder sur la confrontation des performances entre elles et en fonction des géométries. C'est l'objet des paragraphes suivants.

V.1.1 TRANSFERT THERMIQUE VS. PERTES DE CHARGE

La représentation du facteur d'intensification thermique, $U \cdot A/V$ ($W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$), en fonction de la puissance de pompage, $F \cdot \Delta P/L$ ($W \cdot m^{-1}$), par unité de longueur est intéressante. Elle est tracée sur la figure V.1. F , ΔP et L correspondent respectivement au débit volumique ($m^3 \cdot s^{-1}$), à la perte de charge (Pa) et à la longueur développée associée (m).

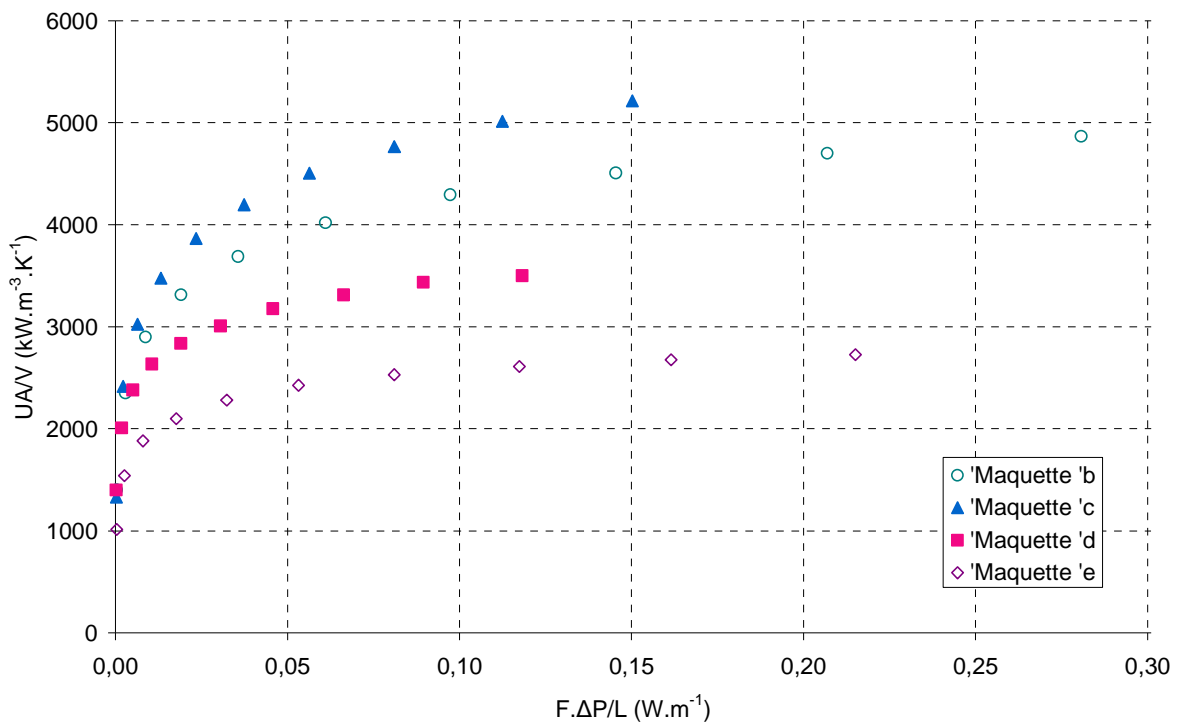


Figure V.1 : Evolution du facteur d'intensification thermique en fonction de la puissance de pompage requise par longueur de canalisation.

Pour une capacité thermique donnée, c'est la maquette 'c' qui nécessite le moins de puissance de pompage et engendre donc le coût de fonctionnement le plus faible. La maquette 'b' génère effectivement plus de pertes de charge pour des capacités en transfert thermique similaires, elle s'avère donc moins intéressante.

Par ailleurs, la nette diminution des pertes de charge linéiques (divisées par 1,5) lorsque le nombre de coudes diminue de 106 coudes/mètre à 44 coudes/mètre ne suffit pas à compenser les pertes en transfert thermique (divisé par 2), d'où une efficacité moindre pour la maquette 'd' par rapport à la maquette 'c'.

Enfin, l'augmentation du rayon de courbure de 1,5 à 4 mm engendre plus de pertes de charge ($\times 1,7$) tout en dégradant les performances thermiques de 30% par l'effet combiné du ratio longueur courbe sur longueur droite et de l'intensité des recirculations. La géométrie de la maquette 'e' est donc la moins intéressante dans ce cas. A fort Reynolds, ses performances sont même moindres que celles d'un simple tube droit comme le montre la figure V.2 qui représente l'évolution théorique du rapport entre le nombre de Nusselt et la racine carrée du facteur de friction en fonction du Reynolds (corrélation de Colburn). Cependant, il faut rester prudent car la corrélation de Colburn utilisée pour évaluer le nombre de Nusselt en tube droit n'est valable que pour les Reynolds supérieurs à 10^4 et si la compacité de l'appareil est prise en compte, la maquette 'e' peut retrouver de l'intérêt.

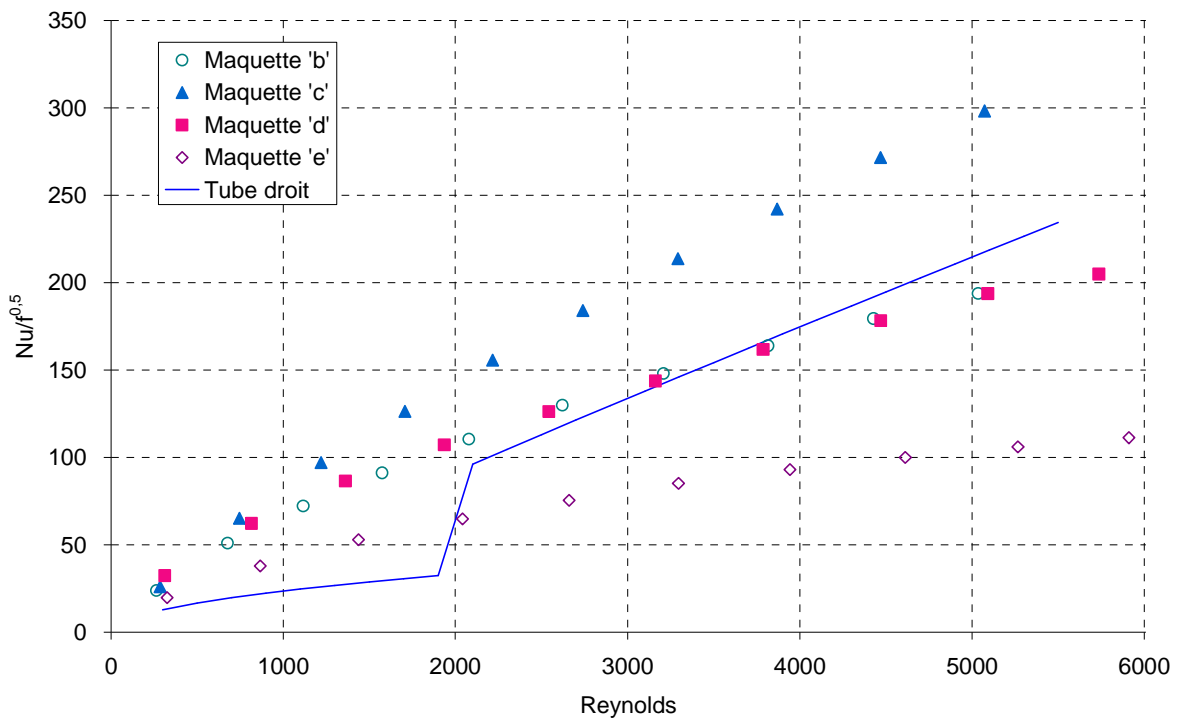


Figure V.2 : Ratio entre Nusselt et facteur de friction en fonction du Reynolds.

L'information concernant le niveau de performance thermique en fonction de la puissance de pompage n'est cependant pas suffisante pour choisir la géométrie la mieux adaptée à un cahier des charges donné. En effet, même si la géométrie de la maquette 'c' semble être la plus prometteuse, elle peut être limitante lorsque l'on fixe une perte de charge admissible maximale. C'est ce qu'illustrent les figures V.3 et V.4. Elles représentent respectivement l'évolution de la perte de charge et l'évolution du facteur d'intensification en fonction du temps de séjour dans les maquettes.

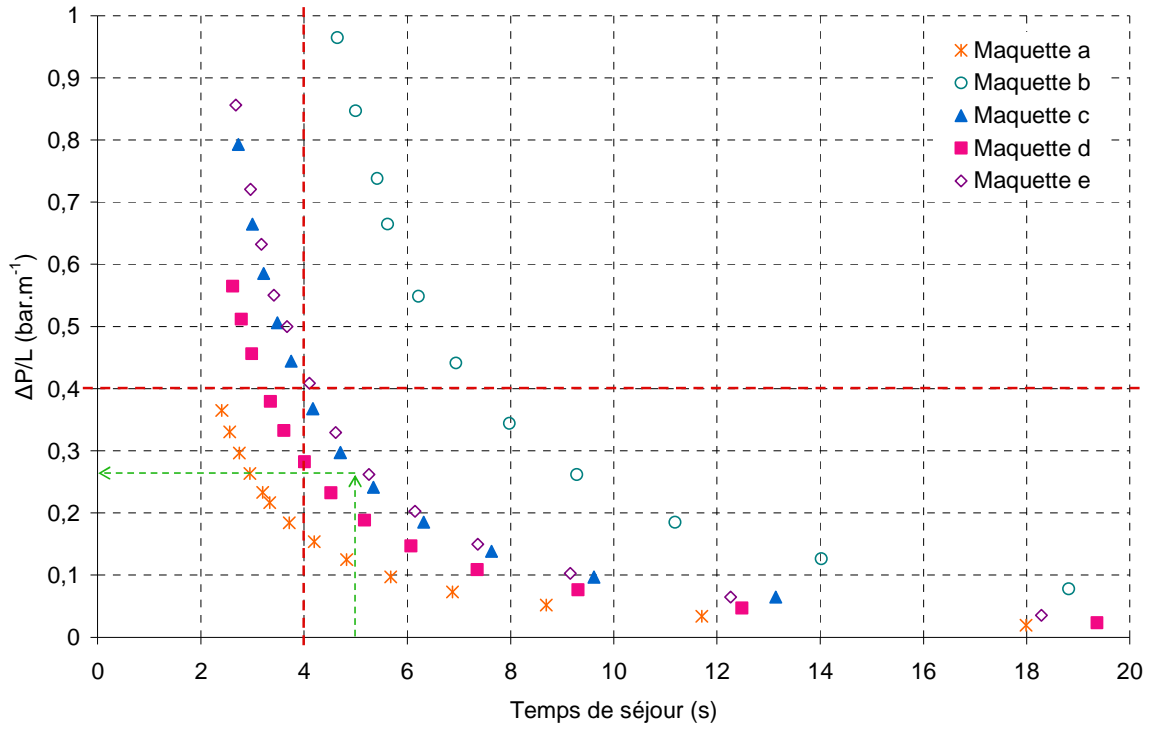


Figure V.3 : Pertes de charge linéiques en fonction du temps de séjour dans les maquettes.

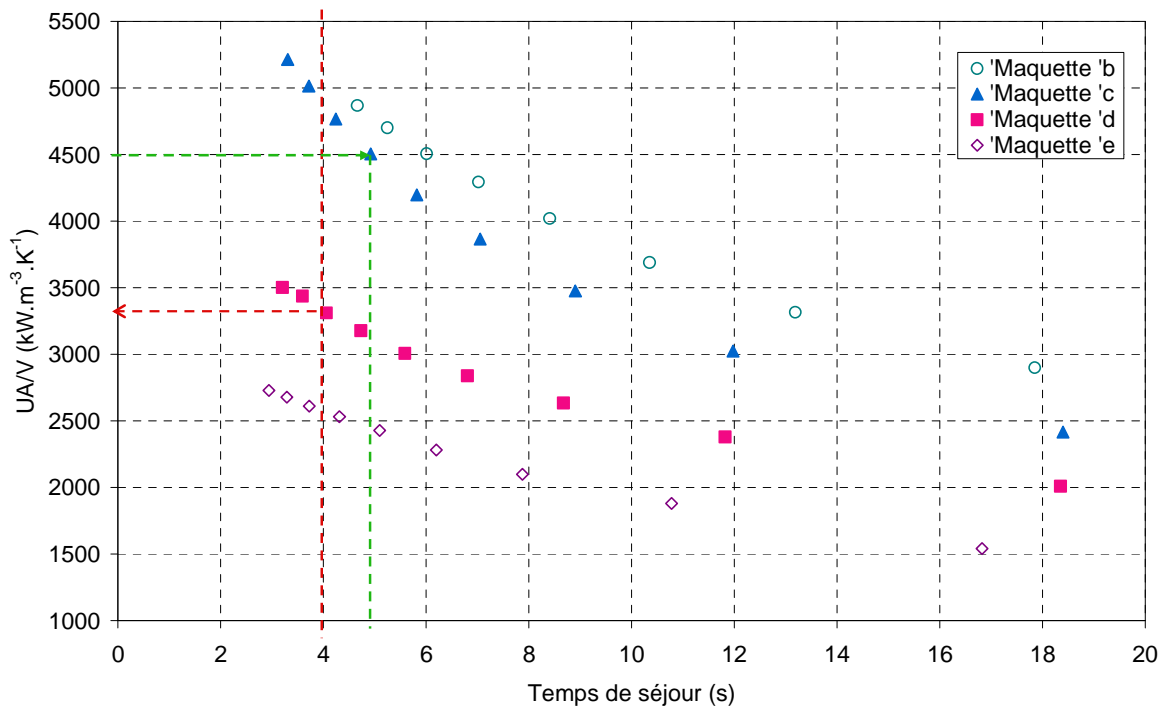


Figure V.4 : Facteur d'intensification en fonction du temps de séjour dans les maquettes.

Le temps de séjour est défini par la chimie. Considérons, par exemple, qu'il ne doit pas être inférieur à 4 secondes par plaque. Si l'on fixe une perte de charge maximale admissible à 0,4 bar/mètre alors, d'après le graphe V.3 (lignes pointillées rouges), seule les maquettes 'a'

ou 'd' conviennent. Le facteur d'intensification correspondant sera alors aux environs de $3300 \text{ kW}\cdot\text{K}^{-1}\cdot\text{m}^{-3}$, d'après le graphe V.4 (ligne pointillée rouge).

Si maintenant cette spécification thermique ne convient pas et que l'on souhaiterait l'augmenter à $4500 \text{ kW}\cdot\text{K}^{-1}\cdot\text{m}^{-3}$, tout en maintenant la contrainte en pertes de charge, c'est la maquette 'c' qui redevient la plus intéressante (pointillés verts). Cependant, ces spécifications correspondent à un temps de séjour de 5 secondes. Or 4 secondes par plaque suffisait, la compacité de l'appareil sera donc moindre.

Bien que la géométrie de la maquette 'c' soit la plus efficace en termes de transfert thermique par rapport à la puissance dissipée, ce petit exemple souligne le fait que les deux aspects, puissance dissipée et perte de charge maximale admissible doivent être pris en compte pour choisir la géométrie la mieux adaptée à nos besoins.

Les transferts thermiques et les pertes de charge sont les caractéristiques les plus influencées par la structure des canaux. L'évolution des coefficients de transfert globaux en fonction de la puissance dissipée est donc une donnée pertinente à prendre en compte.

Pour compléter ces résultats, les temps de mélange et les DTS en fonction de la puissance dissipée sont également considérés.

V.1.2 TEMPS DE MELANGE VS. PUISSANCE DE POMPAGE

A faibles débits, les pertes de charge sont très faibles et donc la puissance dissipée est quasiment équivalente pour chaque maquette. L'influence des géométries sur le temps de mélange est donc similaire à celle observée dans le chapitre IV. Sur la figure V.5, nous avons représenté les valeurs de temps de mélange en fonction de la puissance de pompage par unité de volume. Mise à part la géométrie de la maquette 'a' qui est évidemment moins performante que les structures ondulées, pour une puissance donnée, la maquette 'e' est moins efficace que les autres (cf. figure V.5).

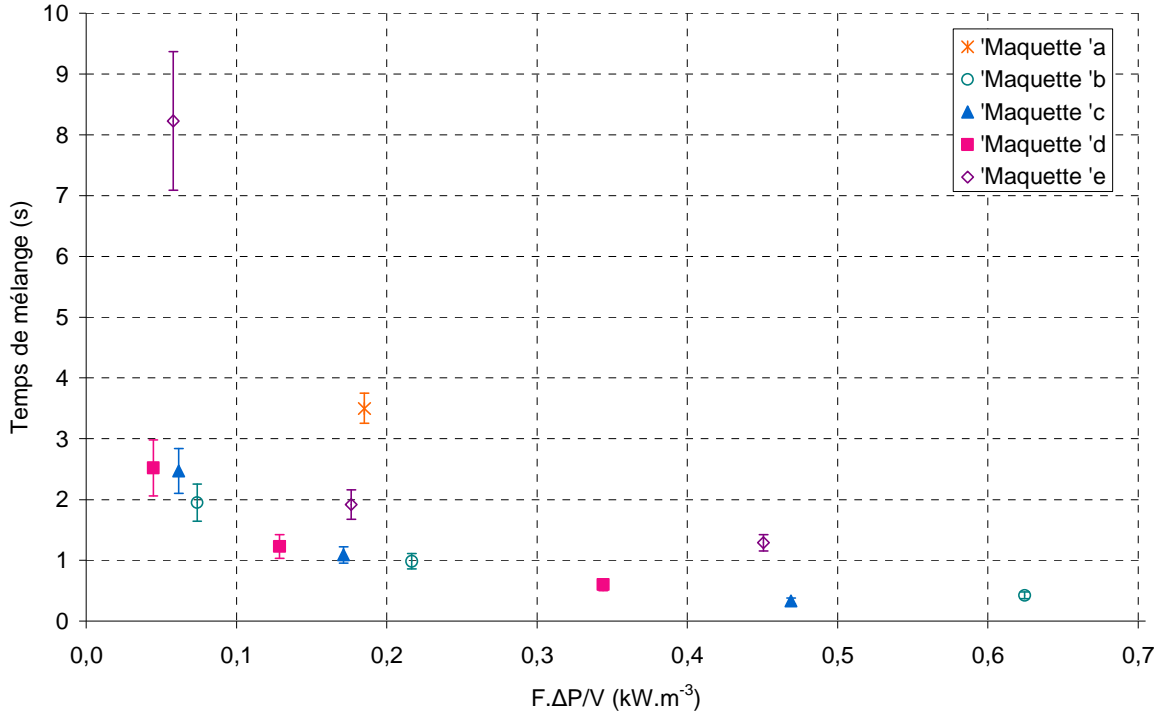


Figure V.5 : Evolution du temps de mélange global en fonction de la puissance de pompage.

A plus fort débit, les puissances de pompage deviennent très différentes et il semblerait que la maquette 'd' soit également moins efficace que les maquettes 'b' et 'c' (cf. figure V.6) à cause de la diminution du nombre de coudes par unité de longueur.

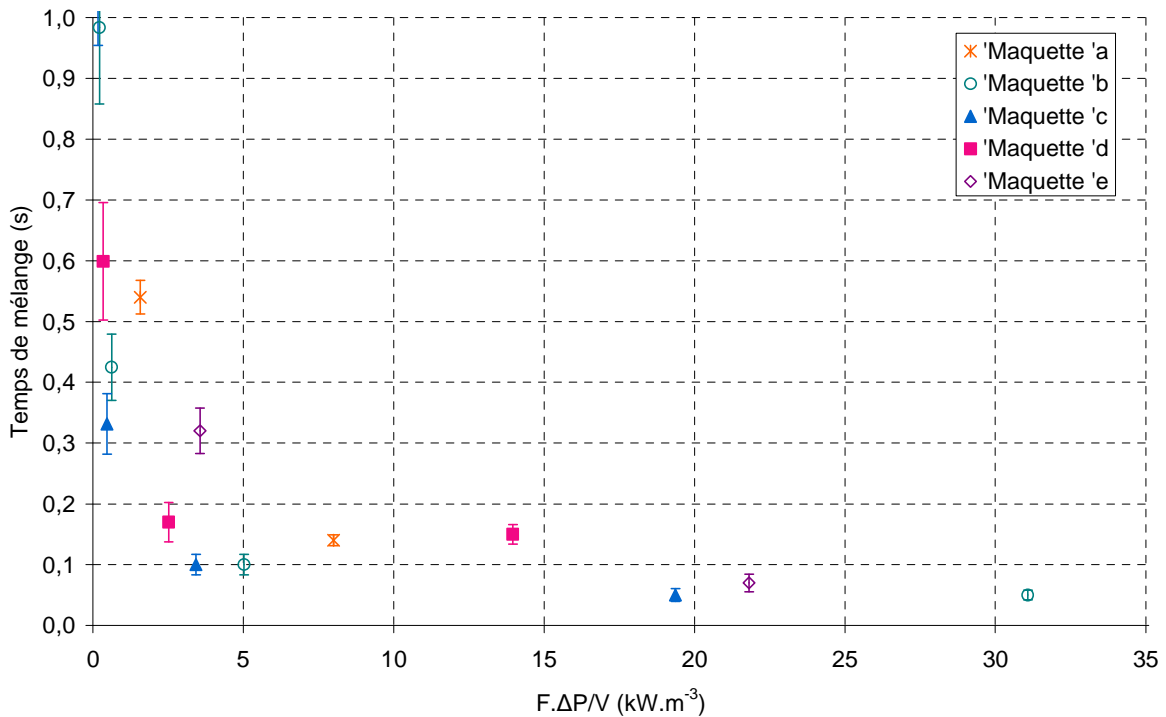


Figure V.6 : Evolution du temps de mélange global en fonction de la puissance de pompage.

Cette représentation confirme les résultats pressentis au chapitre IV : les performances de mélange ne sont pas déterminantes concernant le choix de la géométrie optimale excepté à très faibles nombres de Reynolds (cas des fluides visqueux par exemple). En effet, pour ces régimes d'écoulement une attention plus particulière devra être portée au ratio diamètre hydraulique sur rayon de courbure de façon à ne pas être limité par le nombre de Dean critique.

Concernant le micromélange, l'évolution de l'indice de ségrégation est représentée en fonction de la puissance volumique dissipée. En effet, à l'échelle de Kolmogoroff, le temps de micromélange est proportionnel à la dissipation visqueuse de l'énergie cinétique, ε :

$$t_{\mu} \approx \left(\frac{\nu}{\varepsilon} \right)^{0,5}$$

qui est elle-même équivalente, en continu à :

$$\varepsilon = \frac{1}{\rho} \cdot \frac{F \cdot \Delta P}{V} \text{ en } \text{W} \cdot \text{m}^{-3}.$$

F, ΔP , V et ρ correspondent respectivement au débit volumique ($\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$), à la perte de charge (Pa), au volume de fluide (m^3) et à sa masse volumique ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$).

Ainsi, plus l'énergie cinétique dissipée est importante, meilleur sera le micromélange. C'est ce qu'illustre la figure V.7 pour la maquette 'a', i.e. pour une injection dans les longueurs droites.

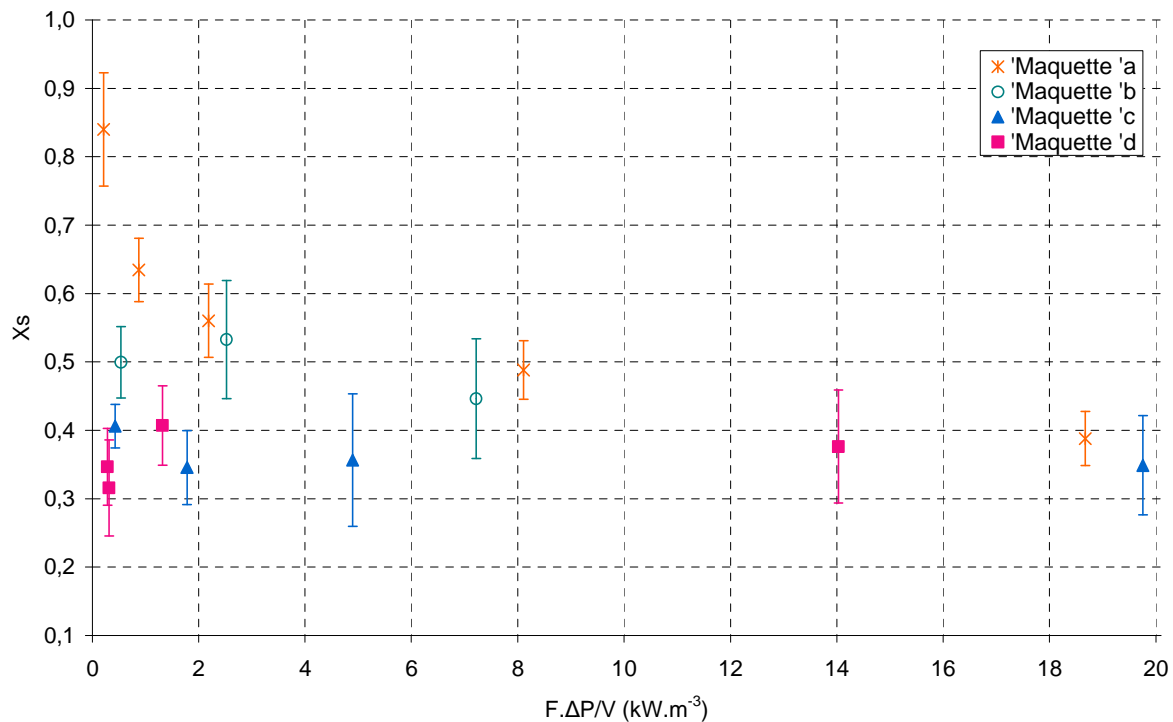


Figure V.7 : Représentation de l'indice de ségrégation en fonction de la puissance volumique dissipée.

A l'incertitude de mesure près, aucune différence n'est observée entre les géométries 'c' et 'd'. Ce n'est pas le cas pour la maquette 'b' dans laquelle le micromélange est moins efficace et plus coûteux en énergie. La figure V.8 est identique à la précédente, seule l'échelle des abscisses est modifiée. Elle souligne les différences dans la géométrie 'b'.

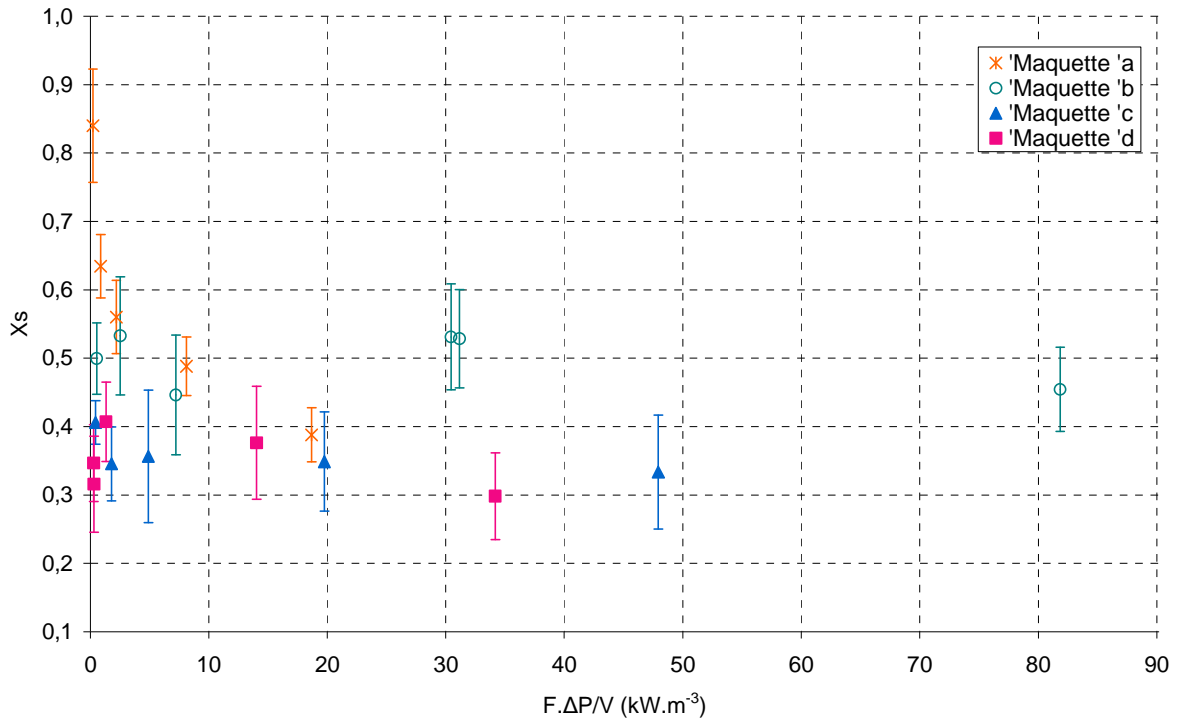


Figure V.8 : Evolution de l'indice de ségrégation pour des puissances volumiques dissipées plus importantes.

Rappelons que l'étude du micromélange ne constituait qu'une première approche dans notre cas afin de s'assurer qu'il n'était pas limitant dans les maquettes. De fait, les géométries ne s'avèrent pas discriminantes à la seule considération du micromélange. En revanche, nous avons vu que la localisation de l'injection l'était nettement plus.

V.1.3 DISTRIBUTION DE TEMPS DE SEJOUR VS. PERTES DE CHARGE

Comme l'illustre la figure V.9, l'évolution du nombre de bacs par unité de longueur en fonction de la puissance dissipée par unité de longueur ne change pas les tendances observées au chapitre III. L'augmentation du ratio longueur courbe sur longueur droite (maquettes 'b' et 'e' par rapport aux maquettes 'c' et 'd' respectivement) ainsi que du nombre de coudes par mètre (maquette 'c' par rapport à maquette 'd') favorisent le comportement piston.

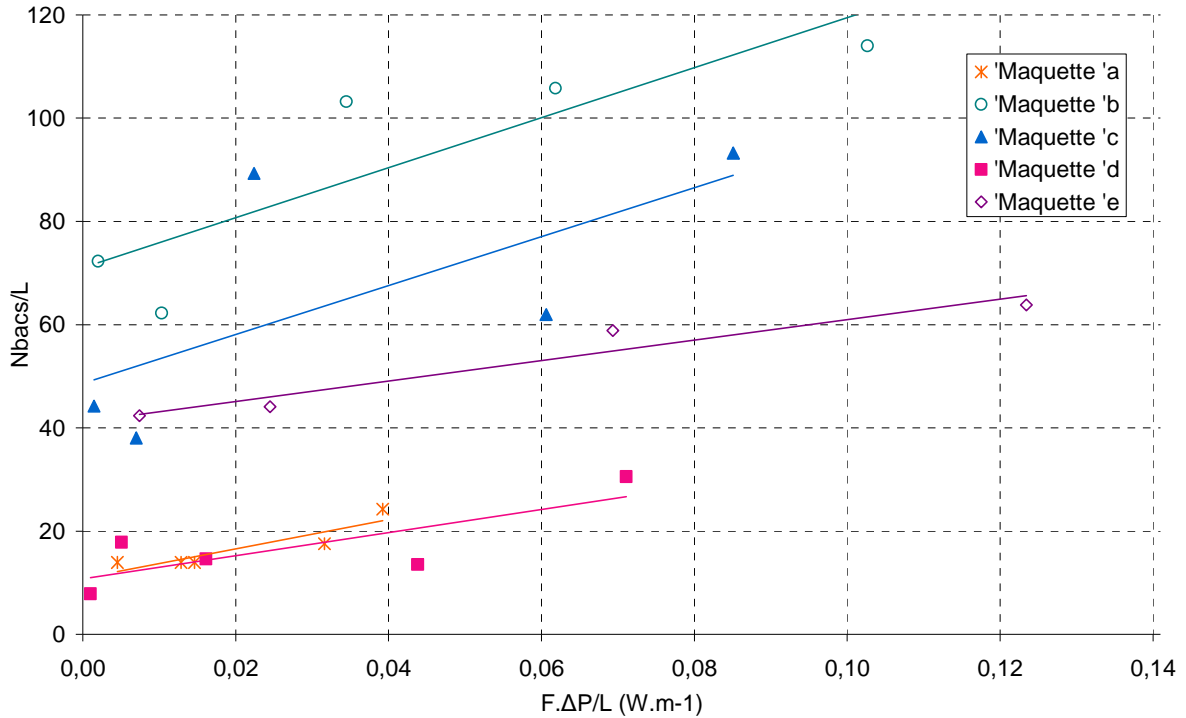


Figure V.9 : Nombre de bacs par unité de longueur en fonction de la puissance dissipée.

Cependant, même si le comportement de l'écoulement diffère selon les géométries, dans chacune, le nombre de bacs équivalent à un mètre de canal reste appréciable garantissant un minimum de 50 bacs par maquette quelle que soit la puissance dissipée, excepté peut-être pour la maquette 'd' qui requiert une longueur de canal légèrement supérieure pour atteindre les mêmes ordres de grandeur en nombre de bacs. C'est ce qu'illustre la figure V.10.

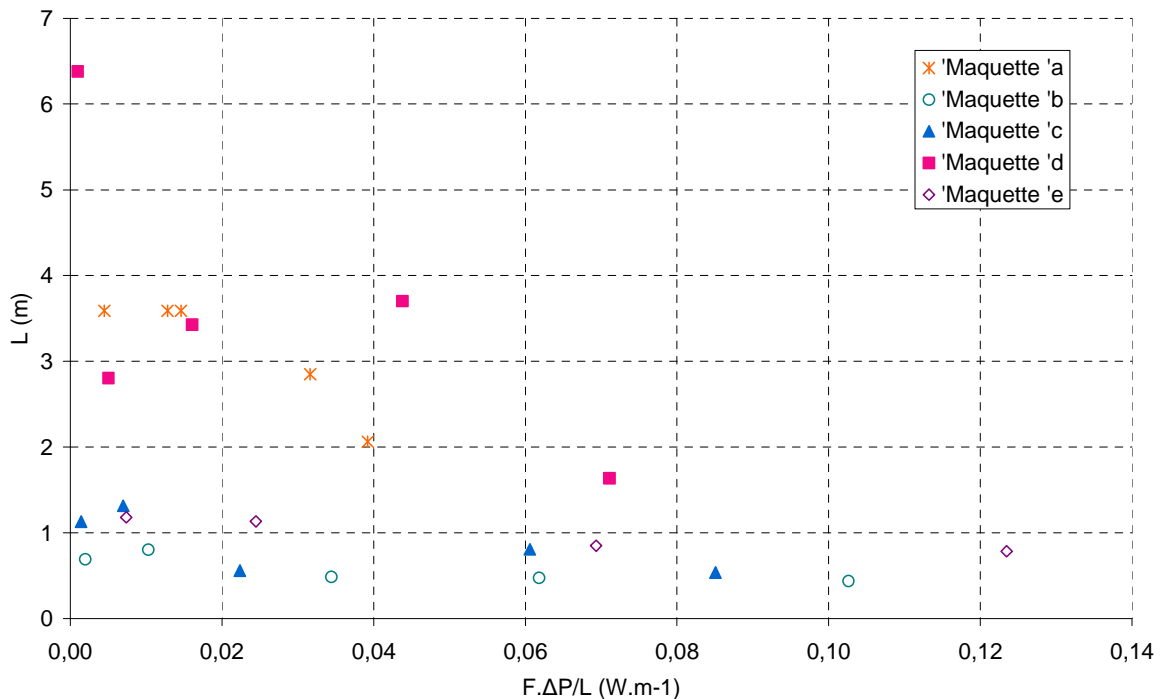


Figure V.10 : Longueur de canal nécessaire pour disposer d'un minimum de 50 bacs.

La valeur limite de 50 bacs est suffisante pour considérer l'écoulement comme piston et pour mettre en œuvre les réactions en toute sécurité sans craindre de pertes de sélectivités. Pour les faibles puissances de pompage, la longueur nécessaire pour atteindre cette limite dans la maquette 'd' est bien plus importante que pour le reste des géométries coudées. Cependant, cette différence tend à se résorber lorsque la puissance mise en œuvre augmente. Par ailleurs les disparités entre les autres géométries ne sont pas suffisantes pour les classer les unes par rapport aux autres. Une longueur développée égale à 1 mètre suffit à chaque fois pour atteindre des régimes d'écoulement piston, le choix se fera donc sur d'autres critères de performances et/ou de compacité. Ainsi, les DTS ne présentent pas de barrières quant au choix de la géométrie optimale.

V.1.4 CONCLUSION

Les paramètres géométriques des canaux n'ayant pas tous la même influence sur chacune des performances caractérisées dans les chapitres III et IV, il était nécessaire de compiler les résultats entre eux afin de déterminer la géométrie optimale. Celle-ci dépendra évidemment de l'utilisation à laquelle la technologie est destinée, du cahier des charges correspondant et de la polyvalence requise. Néanmoins, les résultats présentés dans ce paragraphe permettent de dégager certaines tendances.

Les transferts de matière, de chaleur et de quantité de mouvement sont d'autant plus efficaces que les recirculations secondaires et/ou la turbulence sont importantes. Ce gain se fait au détriment des pertes de charge. Les structures ondulées intensifiant les performances thermiques, de mélange et favorisant les écoulements piston ne sont donc pas avantageuses en termes de pertes de charge. Pour quantifier cela, dans chaque géométrie, l'évolution des critères de performance (coefficient de transfert de chaleur global, temps de mélange et nombre de bacs) en fonction de la puissance dissipée par unité de longueur ou de volume a été examinée.

Les performances thermiques sont les plus impactées par la prise en compte de la puissance de pompage requise. La maquette 'b', dont l'évolution du coefficient de transfert de chaleur en fonction du Reynolds était similaire à celle de la maquette 'c', présente des pertes de charge élevées et la puissance requise pour arriver au même niveau d'échange est alors plus importante. La géométrie de type 'b' perd donc de son intérêt. L'échange thermique dans les maquettes 'd' et 'e' était trop faible par rapport à la maquette 'c' pour espérer combler cette différence par la différence de pertes de charge et finalement, c'est la géométrie 'c' qui fournit le meilleur rapport transfert thermique/coût énergétique. Cependant, il faut rester vigilant vis-à-vis des exigences fixées par le cahier des charges car même si la puissance requise pour un niveau d'échange donné est la plus faible, il n'est pas certain que les contraintes en pertes de charge admissible ou en débit minimal soient respectées.

La contrainte en temps de mélange n'est pas discriminante pour les géométries. En effet, dès lors que la puissance de pompage est supérieure à $1 \text{ kW}\cdot\text{m}^{-3}$, aucune différence n'est observée entre les géométries. En deçà, i.e. pour des débits relativement faibles, les régimes d'écoulement s'approchent des valeurs critiques en nombre de Dean et des

disparités entre les maquettes de rayons de courbure différents apparaissent (maquette 'd' et 'e'). La maquette 'e' devient alors plus coûteuse en énergie pour atteindre les niveaux de mélange similaires aux autres maquettes. Ces cas peuvent être rencontrés lors de l'utilisation de fluides visqueux par exemple, il faudra donc être vigilant sur ce paramètre géométrique.

Finalement, la conclusion sur le comportement des DTS pour chaque géométrie quant à la puissance dissipée par unité de longueur est inchangée par rapport à ce que l'on avait énoncé au chapitre III. La géométrie 'b' est la moins coûteuse pour un nombre de bacs donné mais chaque géométrie permet en fait d'atteindre des niveaux convenables en nombre de bacs pour considérer que l'écoulement se comporte quasiment comme un piston. 1 mètre de longueur développée est suffisant pour obtenir 50 bacs dans les maquettes 'b', 'c' et 'e' ; ce chiffre est plus important pour la maquette 'd' mais décroît rapidement quand la puissance dissipée augmente. Le critère de DTS n'est donc pas discriminant pour choisir la géométrie la plus appropriée. Quelle que soit la puissance admissible maximale, le comportement piston sera toujours atteint, la différence se fera sur la compacité de l'appareil.

V.2 EXEMPLES D'APPLICATION

L'objectif de ce paragraphe est de confronter les tendances obtenues précédemment ainsi que celles des chapitres III et IV à des applications concrètes. La première partie est axée sur une problématique industrielle dont le cahier des charges a été défini pour le projet RAPIC (chapitre II). La seconde partie compare les performances des structures ondulées par rapport aux technologies classiques de réacteur discontinu, notamment lors de la mise en œuvre de réactions exothermiques.

V.2.1 CAHIER DES CHARGES INDUSTRIEL

Les structures ondulées ont été développées pour intensifier les transferts dans des régimes d'écoulement caractérisés par des nombres de Reynolds les plus faibles possible afin de limiter les pertes de charge et d'avoir un temps de séjour suffisant pour la chimie. Cette technologie vise à être insérée dans des appareils types échangeurs à plaques pour réaliser une production en continu. Dans le cadre du projet RAPIC, afin de s'assurer de l'efficacité de ces appareils en réponse à des contraintes industrielles précises, un cahier des charges a été défini (chapitre II). La spécification haute est rappelée dans le tableau V.2.

Débit de production ($L \cdot h^{-1}$)	4000
Perte de charge admissible (bar)	1
$U \cdot A/V$ ($kW \cdot m^{-3} \cdot K^{-1}$)	1100
Volume de réacteur (L)	143
Temps de séjour (s)	129
Température de l'utilité ($^{\circ}C$)	95

Tableau V.2 : Cahier des charges de type industriel défini pour le projet RAPIC.

Le débit de production correspond à des objectifs industriels qui ne sont naturellement pas atteignables dans les maquettes expérimentales ; or l'objectif de ce chapitre est de comparer les prototypes entre eux dès l'échelle 'pilote' en termes de performances et de compacité de l'appareil global. Nous avons donc procédé à un scale-down sur les débits opératoires en passant de $4000 \text{ L}\cdot\text{h}^{-1}$ à $10 \text{ L}\cdot\text{h}^{-1}$ (facteur 400).

Pour le milieu réactionnel, nous avons cherché à opérer à productivité constante en maintenant les débits molaires. Cela revient à multiplier par 400 les concentrations molaires, le volume ne devant cependant pas être divisé de plus de 400 fois afin de maintenir le temps de séjour constant. La chaleur générée par la réaction s'écrit :

$$Q = \Delta H_r \cdot C_i \cdot F_i \quad (\text{V-1})$$

ΔH_r , C_i et F_i sont respectivement l'enthalpie de réaction en Joule par mol de réactif i , la concentration molaire en réactif i et son débit volumique. Ainsi en divisant le débit par 400 et en multipliant les concentrations par 400, la chaleur générée par la réaction est identique à celle du cahier des charges de même que doit l'être la contrainte en $U\cdot A/V$. Le nouveau cahier des charges pour les maquettes expérimentales est donc récapitulé dans le tableau V.3. Les propriétés des fluides de travail sont également indiquées :

Débit de production ($\text{L}\cdot\text{h}^{-1}$)	10
$U\cdot A/V$ ($\text{kW}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{K}^{-1}$)	1100
Volume de réacteur (L)	0,36
Temps de séjour (s)	129
Température de l'utilité ($^{\circ}\text{C}$)	95
Masse volumique ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$)	1020
Viscosité ($\text{Pa}\cdot\text{s}^{-1}$)	0,0015
Conductivité thermique ($\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$)	0,12
Capacité calorifique ($\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$)	1950

Tableau V.3 : Cahier des charges relatif aux maquettes expérimentales défini pour le projet RAPIC.

A partir de ces conditions de travail et des performances de chaque maquette établies dans les chapitres précédents, les volumes de fluide et de l'échangeur/réacteur dans sa globalité sont calculés de façon à respecter ce cahier des charges. Les compacités sont ensuite comparées entre elles. Détaillons le principe du calcul.

Les dimensions des plaques élémentaires sur lesquelles sont gravées les structures ondulées sont fixées à $0,5 \times 0,3 \times 0,02 \text{ m}^3$. Pour chaque géométrie, à partir du pas et de la hauteur d'un motif (1 longueur droite + 1 coude), le nombre maximal de motifs par plaque est calculé. La longueur du canal développée équivalente est déduite. A partir de là, le nombre de plaques en parallèle est calculé afin de respecter la consigne en transfert de chaleur tout en limitant au maximum les pertes de charge. En effet, la variation du nombre de plaques parallèles influe sur la vitesse débitante dans les canaux et donc sur le nombre de Reynolds dont dépendent les corrélations en Nusselt et en Darcy.

Connaissant la vitesse de l'écoulement et la longueur développée, le temps de séjour dans la maquette est calculé. S'il n'est pas suffisant par rapport au cahier des charges, une ou plusieurs plaques en série sont ajoutées.

Finalement, le volume global de l'appareil est calculé et comparé entre les différentes géométries. La figure V.11 représente schématiquement la démarche adoptée.

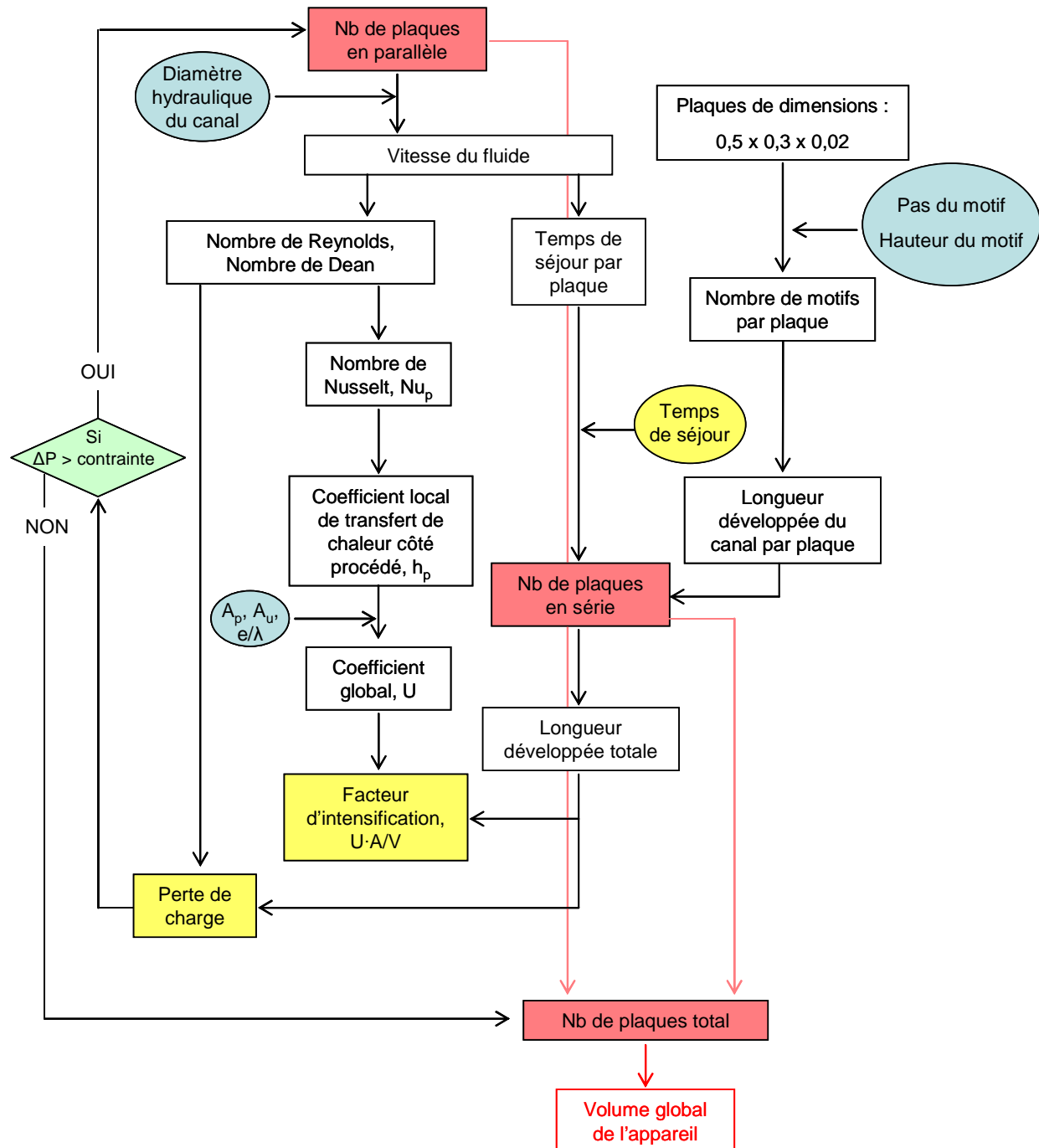


Figure V.11 : Schéma décrivant le calcul du volume global des maquettes à partir de spécifications données en facteur d'intensification, pertes de charge et temps de séjour.

Les spécifications du cahier des charges concernent le temps de séjour, le facteur d'intensification et les pertes de charge (en jaune). Le calcul permet d'obtenir le volume

global de l'appareil pour respecter ces consignes. Les données en bleu correspondent aux contraintes fixées par la géométrie du canal. A_p , A_u et A_m correspondent respectivement à aux aires d'échange côté procédé, côté utilité et à la moyenne des deux. Il a été décidé de prendre A_p égale aux deux faces du canal procédé qui serait en contact avec des plaques de refroidissement et A_u égale à la surface des plaques utilité.

Les résultats détaillés des calculs dans nos géométries sont donnés dans le tableau V.4.

	Maquette 'b'	Maquette 'c'	Maquette 'd'	Maquette 'e'
Hauteur du motif (mm)	15	10	12	15
Pas du motif (mm)	4,7	7	16,5	20
Nombre de motifs par rangée	25	16	6	5
Nombre de rangées par plaque	30	48	38	30
Longueur développée par plaque (m)	16,8	14,8	11,0	8,6
Nombre de plaques en parallèle	3	3	3	2
Nombre de plaques en série	2	2	3	6
Perte de charge (bar)	3,0	2,0	1,7	6,5
U·A/V (kW·K⁻¹·m⁻³)	1196	1105	1109	957
Temps de séjour (s)	145	128	143	149
Volume global de l'appareil (m³)	0,018	0,018	0,027	0,036

Tableau V.4 : Comparaison de la compacité de chaque maquette pour une application donnée par le tableau V.3.

Le nombre de plaques en parallèle est nécessairement un nombre entier. Il est choisi de telle sorte que le facteur d'intensification U·A/V soit au minimum égal à la consigne donnée dans le cahier des charges, d'où certaines disparités des valeurs entre les maquettes. La géométrie 'e' ne permet pas d'atteindre les performances souhaitées. La compacité des canaux est faible, imposant une longueur développée moins importante que dans les autres maquettes. Par conséquent, il faut 7 plaques en série pour satisfaire la contrainte en temps de séjour, augmentant considérablement les pertes de charge. Cette caractéristique, couplée aux performances thermiques moins bonnes que dans les autres géométries, rend cette maquette inintéressante pour cette application.

La maquette 'd' est avantageuse du fait des faibles pertes de charge engendrées par la structure des canaux. Cependant, le pas des motifs est relativement important et ne permet pas d'avoir des longueurs développées suffisamment longues pour que la compacité de cet appareil puisse rivaliser avec les maquettes 'b' et 'c'. Cette géométrie reste tout de même compétitive si la contrainte en pertes de charge est stricte.

Finalement, ce sont les deux géométries 'b' et 'c' qui sont les plus compactes. Les performances thermiques de la maquette 'b' sont supérieures de 8% à celles de la maquette 'c' mais pour une hausse de pertes de charge de 40%. Comme le prédisaient les graphes présentés dans la première partie de ce chapitre, la géométrie 'b' reste moins intéressante que la 'c'. La tendance pourrait s'inverser si la contrainte en transfert de chaleur était telle qu'il faille ajouter une plaque supplémentaire au prototype 'c' sans modifier l'agencement de la maquette 'b'. En effet, la configuration de 3 plaques en parallèle et 2 plaques en série pour la maquette 'b' permet d'obtenir un facteur d'intensification de $1200 \text{ kW}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{K}^{-1}$. Pour obtenir ce niveau d'échange dans la maquette 'c', il faudrait réduire le nombre de plaques en parallèle à 2 et ajouter une troisième plaque en série afin de conserver le temps de séjour, ce qui porterait les pertes de charge à 5 bars et défavorise la maquette 'c' dans ce cas particulier où les dimensions des plaques sont fixées.

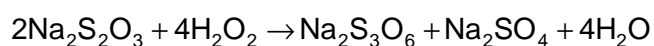
Finalement, au travers de ce simple exercice, nous avons voulu montrer comment, à partir de contraintes fixées par un cahier des charges, nous pouvons parvenir à sélectionner la géométrie la mieux adaptée au problème donné. Les calculs confirment les tendances prédites par les graphes de compilation des résultats expérimentaux en ajoutant un paramètre supplémentaire, le facteur de compacité, non négligeable, notamment dans la gestion des coûts de fabrication et d'exploitation. Toutefois, même si la maquette 'c' apparaît encore une fois comme la plus avantageuse, les autres géométries peuvent garder un intérêt pour des applications plus sévères en termes de pertes de charge ou pour des agencements particuliers.

V.2.2 SIMULATION DE LA MISE EN ŒUVRE D'UNE REACTION EXOTHERMIQUE

Dans le paragraphe précédent, à partir d'un cahier des charges précis et des performances des maquettes, la géométrie la plus adaptée était sélectionnée pour conduire dans les meilleures conditions possibles une réaction de type industriel. Dans ce paragraphe la démarche est différente. La mise en œuvre d'une réaction exothermique, de cinétique connue, est simulée dans les différentes maquettes mais également dans un réacteur discontinu classique. Les résultats de simulation fournissent les profils de température dans les divers appareils qui dépendent essentiellement des concentrations en réactifs. Ainsi, en fonction des performances thermiques de chaque technologie, les productivités vont varier, l'enjeu de ce paragraphe étant d'en donner quelques ordres de grandeur et de les comparer entre elles ainsi qu'avec un appareil fonctionnant totalement en discontinu.

V.2.2.1 Réaction et conditions opératoires

La réaction étudiée est l'oxydation du thiosulfate de sodium par le peroxyde d'hydrogène (*Lo & Cholette, 1972*). Elle est relativement rapide à température ambiante, irréversible, très exothermique et se déroule en phase liquide homogène. Le schéma réactionnel est le suivant :



La cinétique est définie par : $r = k \cdot [S_2O_3^{2-}] \cdot [H_2O_2]$

Avec : $k = k^0 \cdot \exp\left(-\frac{E}{R \cdot T}\right)$

Et

$$k^0 = 2 \cdot 10^{10} \text{ L} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$$

$$E = 6,82 \cdot 10^4 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1}$$

L'enthalpie de réaction vaut : $\Delta H_r = -586,2 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$

Les conditions opératoires sont fixées pour toutes les technologies. La température du fluide de refroidissement est de 15°C et les réactifs sont introduits à 20°C (température ambiante). Le débit total dans les maquettes est fixé à 10 L·h⁻¹ et le volume du réacteur discontinu à 100 litres.

A partir de la résolution des bilans thermiques et massiques, le modèle calcule les évolutions de température et de concentrations en fonction du temps (réacteur discontinu) ou de la longueur de canal (maquettes). Pour chaque dispositif, l'élévation de température maximale est fixée à 8,5°C, soit une température du milieu réactionnel de 28,5°C au maximum. Les concentrations initiales sont ajustées pour respecter cette consigne. A partir de leurs valeurs, et connaissant l'enthalpie de réaction, il est possible de déterminer l'élévation adiabatique de température, ΔT_{ad} . Cette variable correspond à l'augmentation de température du milieu réactionnel, due à la chaleur de réaction, lorsqu'il n'y a pas d'échange avec le fluide de refroidissement (réacteur adiabatique). Dans ce cas, seule la masse réactionnelle absorbe la chaleur générée par la réaction, le bilan thermique s'écrit donc en mode discontinu et en mode continu :

$$m \cdot C_p \cdot \Delta T = n \cdot \Delta H_r \quad \text{et} \quad \dot{m} \cdot C_p \cdot \Delta T = \dot{n} \cdot \Delta H_r \quad (\text{V-2}) \text{ et } (\text{V-3})$$

L'élévation adiabatique de température s'écrit alors :

$$\text{En discontinu :} \quad \Delta T_{ad} = \frac{C \cdot V \cdot \Delta H_r}{m \cdot C_p} \quad (\text{V-4})$$

$$\text{En continu :} \quad \Delta T_{ad} = \frac{C \cdot F \cdot \Delta H_r}{\dot{m} \cdot C_p} \quad (\text{V-5})$$

La comparaison des ΔT_{ad} est intéressante car elle reflète directement les écarts de concentrations entre les systèmes étudiés et donc leur productivité.

V.2.2.2 Modélisation dans les maquettes

Le simulateur utilisé pour modéliser la réaction d'oxydation dans les maquettes a été développé par Elgue et al. (2006). Les données d'entrée sont les concentrations initiales en réactifs, les caractéristiques géométriques du canal dans lequel se déroule la réaction (aire d'échange, diamètre hydraulique, longueur développée), les caractéristiques du matériau

(conductivité thermique, chaleur spécifique massique et masse volumique), les propriétés physico-chimiques des fluides 'utilité' et 'procédé' et les performances thermiques des maquettes (facteur $U \cdot A/V$) déterminées expérimentalement à $10 \text{ L} \cdot \text{h}^{-1}$. A correspond toujours à une seule des quatre faces du canal et V au volume de fluide réactionnel Le tableau V.5 récapitule les caractéristiques des maquettes dans ces conditions :

	Maquette 'b'	Maquette 'c'	Maquette 'd'	Maquette 'e'
L (m)	4,98	3,55	3,67	3,40
Aire d'échange (m²)	$9,96 \cdot 10^{-3}$	$1,12 \cdot 10^{-3}$	$7,35 \cdot 10^{-3}$	$6,79 \cdot 10^{-3}$
Débit 'procédé' (L·h⁻¹)			10	
T_pⁱⁿ (°C)			20	
U·A/V (kW·m⁻³·K⁻¹)	4300	4500	3060	2430

Tableau V.5 : Caractéristiques des maquettes nécessaires à la modélisation.

La maquette 'c' possède les meilleures performances thermiques. La première modélisation a donc été réalisée dans cette géométrie. Les limites de solubilité pour le peroxyde d'hydrogène et le thiosulfate de sodium sont respectivement égales à 30,5% et 35% massiques. Leurs débits respectifs sont fixés à 3,5 et 6,5 $\text{L} \cdot \text{h}^{-1}$ et les fractions molaires correspondantes valent :

$$x_{\text{peroxyde}} = 18,86\% \text{ mol.} \quad \text{et} \quad x_{\text{thiosulfate}} = 5,78\% \text{ mol.}$$

Dans ces conditions opératoires, l'élévation adiabatique de température est importante et vaut 220°C. En fonctionnement, le modèle ne prévoit qu'une élévation du milieu réactionnel à 28,5°C, ce qui signifie que les performances thermiques de la géométrie 'c' pour évacuer la chaleur sont remarquables.

Puisque les réactifs ne peuvent pas être concentrés au-delà des limites de solubilité, il est impossible d'atteindre des écarts de température de plus de 8,5°C dans la maquette 'c' lorsque les réactifs sont initialement à 20°C. Nous avons donc décidé de fixer cette valeur comme écart maximal à ne pas dépasser dans les autres technologies. Concrètement, il pourrait s'agir d'une borne supérieure de température au-delà de laquelle la sélectivité serait compromise par exemple. Ainsi dans les maquettes suivantes, l'exercice a consisté à déterminer les niveaux de concentrations initiales des réactifs de telle sorte que l'élévation de température du milieu ne dépasse pas 28,5°C. Le tableau V.6 fournit les résultats des modélisations, en ne jouant que sur le réactif thiosulfate de sodium.

	ΔT_{ad} (°C)	x_{peroxyde} (% mol.)	$x_{\text{thiosulfate}}$ (% mol.)
Maquette 'b'	205	18,86	5,20
Maquette 'c'	220	18,86	5,78
Maquette 'd'	179	18,86	4,30
Maquette 'e'	158	18,86	3,68

Tableau V.6 : Résultats des simulations de la mise en œuvre de la réaction d'oxydation dans les réacteurs continus.

Comme prévu, lorsque les coefficients d'échange globaux diminuent, il est nécessaire de réduire les concentrations en réactif limitant pour éviter que la température ne s'élève au dessus de 28,5°C. Les écarts sont assez conséquents puisqu'une différence de 36% est observée entre les maquettes 'c' et 'e', réduisant d'autant la productivité.

La comparaison est encore plus intéressante lorsque la réaction est transposée du mode continu vers le mode discontinu. C'est l'objet du paragraphe suivant.

V.2.2.3 Modélisation dans un réacteur discontinu

Le volume du milieu réactionnel est fixé à 80 L, pour un contenant de 100 L. L'aire d'échange d'un réacteur à double enveloppe est calculée par la relation de Schweich (2001) :

$$\frac{A}{V} = (4,9 \pm 0,6) \cdot V^{-\frac{1}{3}} \quad (V-6)$$

Dans ce cas, elle vaut 1,1 m². La valeur maximale du coefficient de transfert global, U, est d'environ 500 W·m⁻²·K⁻¹ (valeur optimiste). Le facteur d'intensification U·A/V vaut donc 5500 W·m⁻³·K⁻¹. De la même manière que dans les maquettes en fonctionnement continu, les réactifs sont introduits à 20°C et la température de la double enveloppe est considérée isotherme et égale à 15°C. La température à ne pas excéder est la même que précédemment soit 28,5°C. Ainsi, à partir de ces caractéristiques, la concentration maximale en thiosulfate de sodium (réactif limitant) qui peut être introduite est égale à 0,14 mol·L⁻¹ soit une fraction molaire de 0,24%. Le peroxyde d'hydrogène est introduit à 0,48% molaire. La figure V.12 représente l'évolution de la température et de la fraction molaire en thiosulfate de sodium au cours du temps, i.e. durant la réaction. Ces valeurs sont obtenues par la résolution conjointe des bilans massiques et thermiques. Le fait de ne pas obtenir une conversion complète est simplement lié à la durée de la simulation qui n'est pas suffisante mais qui pourrait facilement être allongée.

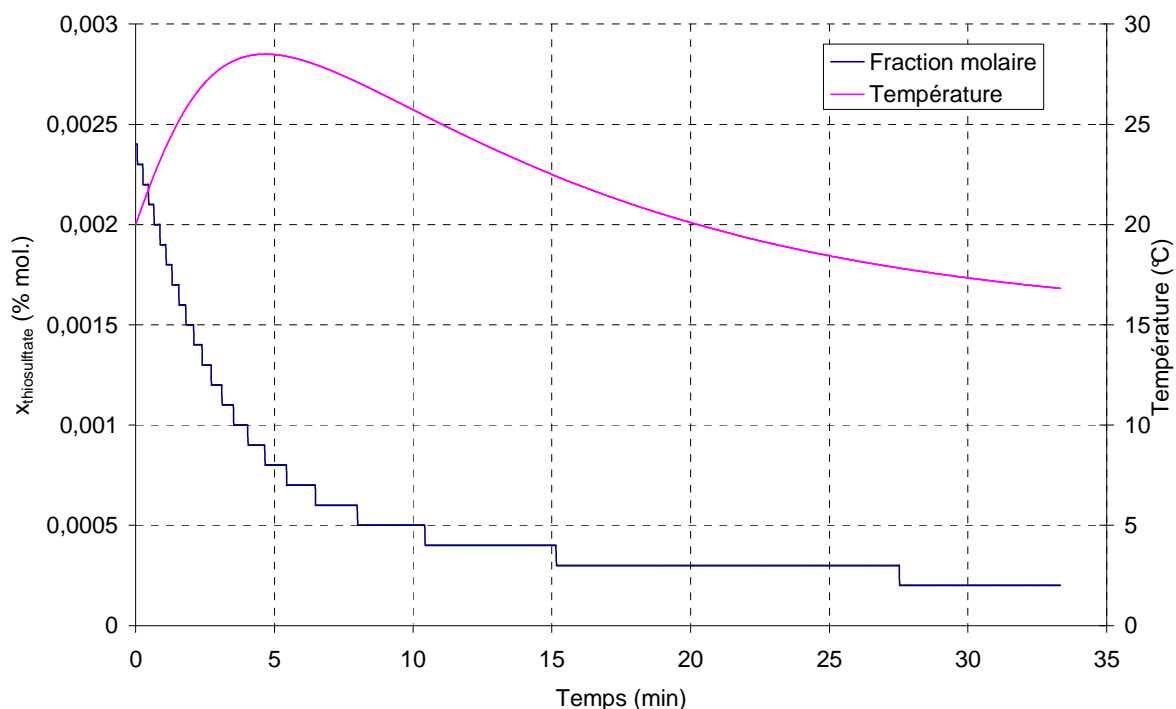


Figure V.12 : Evolution de la température du milieu réactionnel et de sa composition dans le réacteur discontinu.

Sans la double enveloppe, l'élévation de température, ΔT_{ad} , aurait été de 19,7°C. Le dispositif d'évacuation de chaleur a donc absorbé une dizaine de degrés.

La comparaison entre les résultats obtenus en mode discontinu et en mode continu dans les maquettes est intéressante. Pour ne pas avoir une température opératoire de plus de 28,5°C, de grandes disparités sont observées au niveau des concentrations initiales en réactif limitant (thiosulfate de sodium). Ainsi la fraction molaire chute de 5,78% (maquette 'c') à 0,24% mol. soit une diminution de 95%. A partir d'une cinétique de réaction donnée, les propriétés de transfert thermique des maquettes permettent donc de redéfinir les conditions opératoires et notamment de travailler avec des concentrations beaucoup plus élevées compensant ainsi le faible temps de séjour en comparaison des réacteurs discontinus classiques. L'exemple que nous avons traité en est une illustration mais la concentration des réactifs reste limitée par les limites de solubilité. Afin d'accélérer encore la cinétique et de diminuer le temps de séjour requis, il est possible de préchauffer les réactifs à 50°C par exemple (Réacteur ShimTec, chapitre I). Ce sont alors des conditions opératoires qui sont impossibles à mettre en œuvre dans un réacteur discontinu classique par risque d'un emballement thermique. Une des voies classique pour y remédier est de mettre en œuvre une coulée dans les réacteurs batch. Dans ce cas, on compare alors des temps d'opération (temps de coulée et temps de séjour dans le réacteur continu). Il s'agit de la démarche que nous avons présentée au chapitre I (§ I.1.3.2.b).

V.3 SYNTHÈSE DU CHAPITRE

L'objectif des chapitres III et IV était d'étudier, pour chaque caractéristique expérimentale (DTS, pertes de charge, mélange et transferts thermiques), l'influence des paramètres géométriques sur les performances des maquettes. Cependant, pour sélectionner la structure la mieux adaptée aux contraintes de fonctionnement, il est nécessaire de comparer entre eux les critères de performance. Ainsi, après avoir synthétisé les résultats expérimentaux, ce chapitre a permis de confronter entre elles chacune des caractéristiques. Deux exemples ont été traités. Ils mettent en application un cahier des charges de type industriel et une réaction exothermique.

Les résultats expérimentaux ont montré que, quelle que soit la géométrie, chaque critère de performance (nombre de bacs, temps de mélange et nombre de Nusselt) s'améliorait lorsque le nombre de Reynolds ou le nombre de Dean augmentait. Ce gain se fait évidemment au détriment des pertes de charge qui croissent elles aussi. Pour sélectionner la géométrie optimale, il est donc pertinent d'étudier l'évolution des critères de performances en fonction de la puissance de pompage. Les DTS qui n'étaient pas limitantes ne le deviennent toujours pas et peu de différences sont observées entre les maquettes. Toutes garantissent un minimum de 50 bacs pour 1 m de longueur développée et donc un écoulement piston. Il en est de même pour le mélange. Aucune géométrie n'est limitante, excepté à très faible Reynolds lorsque l'écoulement bascule en dessous des régimes de Dean. Dans ce cas (fluides visqueux par exemple), il existe de plus grandes disparités entre les maquettes et une attention plus particulière doit être portée au design des canaux. Finalement, le critère le plus déterminant est celui qui représente l'évolution des performances thermiques en fonction de la puissance de pompage. C'est la maquette 'c' qui, pour un niveau d'échange donné, est la moins coûteuse. La maquette 'b' est en effet trop gourmande en pertes de charge pour des performances thermiques similaires et la diminution du nombre de coudes par unité de longueur dans les maquettes 'd' et 'e', bien que favorable aux pertes de charge, ne permet pas d'atteindre les niveaux d'échange des autres géométries. Cependant, même si la maquette 'c' semble être la plus efficace pour une puissance de pompage donnée, il faut veiller à respecter la perte de charge maximale admissible et/ou le débit minimal de fonctionnement qui peuvent éventuellement écarter la maquette 'c' au profit des maquettes 'd' et 'e'.

Pour illustrer les résultats issus de la confrontation des critères de performances, deux exemples ont été mis en application : la comparaison des géométries vis-à-vis du cahier des charges établi pour le projet RAPIC et la transposition d'une réaction exothermique d'un réacteur discontinu vers les maquettes. L'étude du comportement des réacteurs lors de la mise en œuvre de ce type de synthèse chimique est intéressante. Elle permet en effet de comparer directement les performances des différentes technologies en termes de productivité. L'étude réalisée a consisté à simuler le déroulement de la réaction dans chaque technologie dont le réacteur discontinu classique. Le dégagement de chaleur dû à la réaction dépend des quantités initiales des réactifs, donc en fixant une élévation maximale de température du milieu réactionnel, les concentrations sont figées. La maquette 'c' étant plus efficace thermiquement, elle accepte les concentrations les plus élevées et des différences de l'ordre de 36% sont observées entre les géométries de canaux structurés. La

comparaison avec la cuve agitée est intéressante. Pour mettre en œuvre l'oxydation dans les mêmes conditions de fonctionnement en température, les concentrations doivent être diluées par 25 abaissant donc la productivité du procédé. Cet exemple souligne le gain qu'apportent les maquettes grâce à l'intensification des transferts thermiques.

Cependant, les autres critères ne sont pas pris en compte et notamment les pertes de charge et la compacité. Ainsi, il est intéressant de s'attarder sur le cas du projet RAPIC dont le cahier des charges répond à des attentes industrielles. A partir des critères fixés sur le coefficient de transfert de chaleur, la perte de charge admissible et le temps de séjour, les géométries ont été comparées entre elles. Le facteur de compacité a également été pris en compte. Ainsi, pour des performances thermiques identiques, la maquette 'b' est la plus compacte mais elle impose des pertes de charge 1,5 et 2 fois plus importantes que dans les maquettes 'c' et 'd' respectivement. La maquette 'e', quant à elle, ne parvient pas à respecter les consignes du cahier des charges. Ainsi, le choix de la géométrie optimale se fera selon le critère fixé : compacité, pertes de charge ou transfert thermique.

Les géométries ayant été caractérisées expérimentalement, les mécanismes de performances sont maintenant connus à l'échelle du laboratoire. Cependant, les débits maxima admissibles sont de l'ordre de la dizaine de litres par heure et les pertes de charge sont autour de 1 bar par unité de longueur. Pour espérer développer ces technologies à l'échelle industrielle et les adapter à des débits plus importants, il est maintenant nécessaire de pouvoir prédire les phénomènes lors du changement de taille des canaux. Les premiers pas vers cette démarche d'extrapolation font l'objet du chapitre VI.

CHAPITRE VI VERS UNE DEMARCHE D'EXTRAPOLATION

L'étude de différentes géométries de canaux ondulés et leur caractérisation expérimentale ont permis de mettre en exergue le comportement des écoulements et de comprendre les mécanismes qui régissent les performances thermo-hydrauliques. Ces données sont nécessaires pour choisir la géométrie la mieux adaptée aux contraintes inhérentes aux cahiers des charges lors de la mise en œuvre de réactions. Cependant, le développement de ces technologies à l'échelle industrielle passe par l'extrapolation des canaux afin de satisfaire les besoins en termes de débit et de pertes de charge notamment.

Lors du processus d'extrapolation, comme nous l'avons vu au chapitre II (§II.2.2), chaque principe de similitude (hydrodynamique, chimique, géométrique,...) devrait être respecté afin de changer d'échelle tout en conservant les performances initiales. Or chacun est caractérisé par ses invariants et ses dimensions caractéristiques propres (temps, longueur,...). Il devient impossible alors de respecter la condition générale de similitude (*Carrière, 2008*) :

$$G_{\text{maquette}} = k \cdot G_{\text{prototype}}, \quad k \text{ étant une constante.}$$

Il est donc nécessaire de connaître l'évolution des critères de performances lors du changement de taille et de déterminer des règles d'extrapolation. C'est l'objectif de ce chapitre.

Pour cela, de nouvelles maquettes ont été réalisées. La structure géométrique des canaux est identique mais leurs dimensions caractéristiques varient (hauteur et largeur du canal). Les données géométriques ainsi que les contraintes technologiques associées sont décrites dans la première partie de ce chapitre. Ensuite, les résultats expérimentaux liés à chaque caractérisation sont présentés et les corrélations correspondantes sont établies. Celles-ci vont permettre de prédire l'évolution des performances lors du changement de taille. Une application numérique est présentée pour clore ce chapitre.

VI.1 CONTRAINTES TECHNOLOGIQUES

Les maquettes caractérisées dans les chapitres précédents supportent un débit moyen de 10 L·h⁻¹. Au-delà, les pertes de charge deviennent trop importantes et rédhibitoires vis-à-vis du coût de fonctionnement qu'elles engendrent. Pour transposer ces technologies à l'échelle industrielle, i.e. pour des débits de l'ordre de 100 à 1000 L·h⁻¹, il est donc nécessaire d'augmenter la taille des canaux. Cette action n'est pas sans conséquence, évidemment sur les performances thermo-hydrauliques, mais également sur la fabrication des canaux elle-même. C'est l'objet du paragraphe suivant.

VI.1.1 FABRICATION DES CANAUX

Pour dessiner les géométries des canaux ondulés à l'aide du logiciel de conception, les dimensions caractéristiques font toutes références à celles de la fibre neutre (c'est-à-dire la ligne médiane). Ensuite lors de la phase de gravure, la fraiseuse numérique centre la fraise sur le dessin. La demi-largeur ($b/2$) du canal est donc fixée par le rayon de la fraise. Cette contrainte mécanique, qui ne peut pas être levée, impacte sur le rayon de courbure. En effet, la distance parcourue par la fraise à l'intérieur du coude est moins importante que son homologue à l'extérieur de la courbure, ce qui se traduit par une variation de rayon de courbure. La figure VI.1 en est une illustration. La fibre neutre est représentée par le trait grisé. De part et d'autre, les traits noirs correspondent aux bordures du canal. Ici le diamètre de la fraise vaut 4 mm, la demi-largeur du canal est donc fixée à 2 mm.

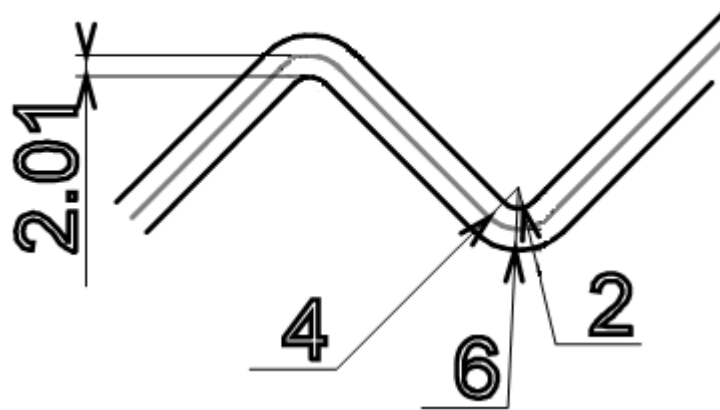


Figure VI.1 : Vue schématique d'un canal ondulé de largeur 4 mm et de rayon de courbure à la fibre neutre de 4 mm.

Les longueurs droites entre chaque coude sont toutes identiques, de même que l'angle des coudes. Les rayons de courbures, quant à eux, dépendent de la largeur du canal. Ainsi, selon que l'on se trouve à l'intérieur ou à l'extérieur du coude et si R_c correspond au rayon de courbure de la fibre neutre, les rayons de courbure internes et externes sont définis par :

$$R_{c_{int}} = R_c - \frac{b}{2} \quad (VI-1)$$

et

$$R_{c_{ext}} = R_c + \frac{b}{2} \quad (VI-2)$$

Le nombre de Dean étant défini par : $De = Re \cdot \sqrt{\frac{d_h}{R_c}}$, trois valeurs relatives aux rayons de courbure interne, externe ou neutre cohabitent dans le canal. Il est vraisemblable et nous le verrons par la suite, que ce soit le nombre de Dean le plus élevé qui pilote l'écoulement, autrement dit, celui engendré par le plus faible rayon de courbure, i.e. le rayon de courbure interne. Il sera noté par la suite, De_i .

Cette particularité géométrique n'est pas sans conséquence sur le processus d'extrapolation. En effet, les canaux ne pourront pas être élargis indéfiniment car le rayon de courbure interne ne peut évidemment pas être inférieur à 0, valeur pour laquelle la courbure correspond à un angle droit.

Ainsi, $R_c - \frac{b}{2} \geq 0$ entraîne $b \leq 2 \cdot R_c$

Dans le cas du canal représenté sur la figure VI.1, la largeur maximale ne pourra donc pas excéder 8 mm.

Expérimentalement, les maquettes caractérisées dans les chapitres précédents ($d_h=2$ mm) dont le rayon de courbure vaut 1,5 mm n'autorisent qu'une largeur maximale de 3 mm.

Il est donc plus intéressant de travailler à partir de la maquette 'e' dont le rayon de courbure à la fibre neutre vaut 4 mm. Cette maquette servira de référence pour l'extrapolation. Deux maquettes supplémentaires ont été réalisées, leurs dimensions caractéristiques étant détaillées dans le paragraphe suivant.

VI.1.2 GEOMETRIES DES MAQUETTES

Afin de prédire l'évolution des performances lors du changement de taille des canaux, trois géométries ont été caractérisées expérimentalement. Les paramètres à la fibre neutre demeurant constants, seule la taille du canal (largeur et hauteur) varie. La figure VI.2 représente schématiquement la fibre neutre du canal.

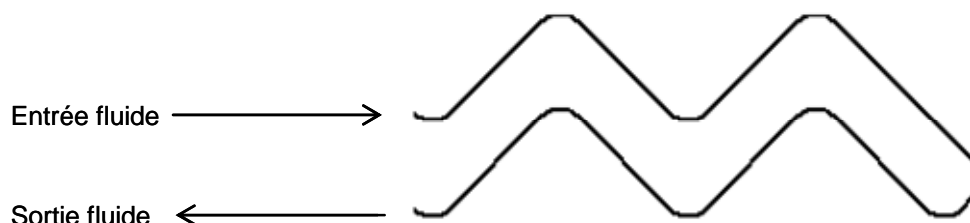


Figure VI.2 : Représentation schématique de quelques coudes et d'un retournement des maquettes 'e', 'f' et 'g' (fibre neutre).

L'écartement minimal entre chaque rangée est égal à 10 mm et le rayon de courbure vaut 4 mm. La largeur du canal ne peut donc pas excéder 8 mm. D'autre part, la gamme de débit correspondant au fonctionnement des pompes se situe entre 2 et 25 $\text{kg} \cdot \text{h}^{-1}$. Pour une section carrée de 8 mm de côté, soit un diamètre hydraulique égal à 8 mm, les nombres de Reynolds seraient compris dans une plage de 35 à 870. La borne supérieure est relativement basse et il est donc apparu préférable de diminuer le diamètre hydraulique pour se rapprocher des gammes de Reynolds étudiées pour les maquettes de diamètre hydraulique égal à 2 mm, soit de 140 à 2100 (le débit variant entre 1 et 15 $\text{kg} \cdot \text{h}^{-1}$).

Cela a été réalisé en considérant une largeur du canal de 4 mm, les nombres de Reynolds variant alors de 140 à 1750. Ils se rapprochent de la gamme visée et c'est donc cette dimension qui a été retenue pour la maquette extrapolée de section carrée. Une maquette de diamètre hydraulique intermédiaire et de section de passage rectangulaire a également été réalisée. Toutes les données caractéristiques ainsi que les régimes de fonctionnement sont détaillés dans le tableau VI.1.

	Maquette 'e'	Maquette 'f'	Maquette 'g'
Longueur développée (m)		3,40	
Angle des coudes		45°	
Longueur droite, L_d (mm)		20,28	
Rayon de courbure à la fibre neutre (mm)		4	
Rayon de courbure interne (mm)	3	3	2
Hauteur du canal, a (mm)	2	4	4
Largeur du canal, b (mm)	2	2	4
Facteur de forme, b/a	1	0,5	1
Diamètre hydraulique (mm)	2	2,67	4
Plage de débit ($\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$)	1 à 15	1 à 20	2 à 25
Plage de vitesse ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)	0,07 à 1,04	0,03 à 0,70	0,03 à 0,43
Plage de Reynolds	140 à 2080	80 à 1870	120 à 1720

Tableau VI.1 : Dimensions caractéristiques des maquettes utilisées pour l'étude de l'extrapolation.

Comme pour les maquettes de diamètre hydraulique égal à 2 mm, les maquettes 'f' et 'g' ont été caractérisées en termes de pertes de charge, DTS, performances thermiques et mélange. Les résultats expérimentaux sont présentés dans le paragraphe suivant.

VI.2 CARACTERISATIONS DES PERFORMANCES

Pour chaque caractérisation, les dispositifs expérimentaux et les protocoles opératoires sont identiques à ceux détaillés dans les chapitres III et IV, seules les conditions de débit ont légèrement varié. Ce paragraphe présente les résultats expérimentaux de l'étude hydrodynamique (pertes de charge et DTS) et des performances thermo-hydrauliques (transfert de chaleur et mélange). Les trois géométries sont comparées entre elles et l'objectif est de comprendre le comportement de l'écoulement lors du changement de taille et/ou de facteur de forme des canaux structurés. La dernière partie concerne les corrélations établies à partir des données expérimentales, dont nous nous servons dans une première approche comme outil de prédiction lors des processus d'extrapolation.

VI.2.1 DISTRIBUTION DU TEMPS DE SEJOUR

Même si l'effet du facteur de forme sur la distribution du temps de séjour a déjà été présenté dans le chapitre III, ce premier paragraphe en rappelle les principales conclusions et complète les résultats avec le canal de section carrée et de diamètre hydraulique égal à 4 mm.

Les DTS ont été réalisées avec le même dispositif expérimental que pour caractériser les autres maquettes, soit par la méthode spectro-photométrique. Afin de travailler dans des gammes de Reynolds relativement proches quelle que soit la géométrie, les débits d'alimentation diffèrent légèrement d'une maquette à l'autre, tout en restant dans la gamme de fonctionnement des pompes. Le tableau VI.2 fournit les conditions de travail en débit, vitesse et nombre de Reynolds ainsi que le nombre de bacs obtenus après modélisation à l'aide du logiciel DTS Pro. La structure des canaux ondulés étant strictement la même pour les trois maquettes, leur longueur développée et le nombre de coudes sont identiques soit 130 coudes pour 3,40 m. De plus, un tube droit en inox de section rectangulaire 2 x 4 mm² et de 1,5 mètre de longueur a également été caractérisé.

	Débit (kg·h ⁻¹)	Vitesse (m·s ⁻¹)	Nombre de Reynolds	Nombre de Dean	Nombre de Dean 'interne'	e _{aire} (%)	Nombre de bacs
Maq. 'e'	5,02	0,35	697	493	569	3	144
	8,00	0,56	1111	786	907	7	150
	12,00	0,83	1667	1179	1361	0	200
	15,02	1,04	2086	1475	1703	-7	217
Maq. 'f'	8,00	0,28	741	605	698	18	179
	15,00	0,52	1389	1134	1310	0	273
	17,80	0,62	1648	1346	1554	2	247
	21,90	0,76	2028	1656	1912	-9	391
Maq. 'g'	9,03	0,16	627	627	887	11	167
	12,02	0,21	835	835	1180	7	184
	14,97	0,26	1040	1040	1470	10	228
	18,06	0,31	1254	1254	1774	-6	367
	21,80	0,38	1514	1514	2141	-9	367
	24,50	0,43	1701	1701	2406	-10	441
Tube droit	12,00	0,49	1189			4	18
	15,18	0,62	1504	-	-	2	27
	17,07	0,69	1691			0	40

Tableau VI.2 : Conditions opératoires et résultats des expériences de DTS.

Pour les trois géométries structurées, le nombre de bacs est particulièrement élevé et toujours supérieur à 100, soit au minimum 40 bacs par unité de longueur ou 1,1 bacs par coude. Dans tous les cas, l'écoulement peut donc être assimilé à un écoulement piston. Ce n'est pas le cas pour le tube droit, dont les performances sont nettement inférieures à celles des tubes coudés. Le nombre de bacs par unité de longueur variant de 12 à 26.

Lors du processus d'extrapolation, l'objectif est d'augmenter la productivité sans entraîner de pertes de charge excessives tout en maintenant le temps de séjour nécessaire à la transformation chimique souhaitée.

La longueur développée des trois maquettes étant identique, il est intéressant de comparer leur DTS en fonction de la vitesse. Ainsi à iso-vitesse, le temps de séjour est constant quelle

que soit la géométrie. La figure VI.3 représente l'évolution du nombre de bacs par unité de longueur en fonction de la vitesse.

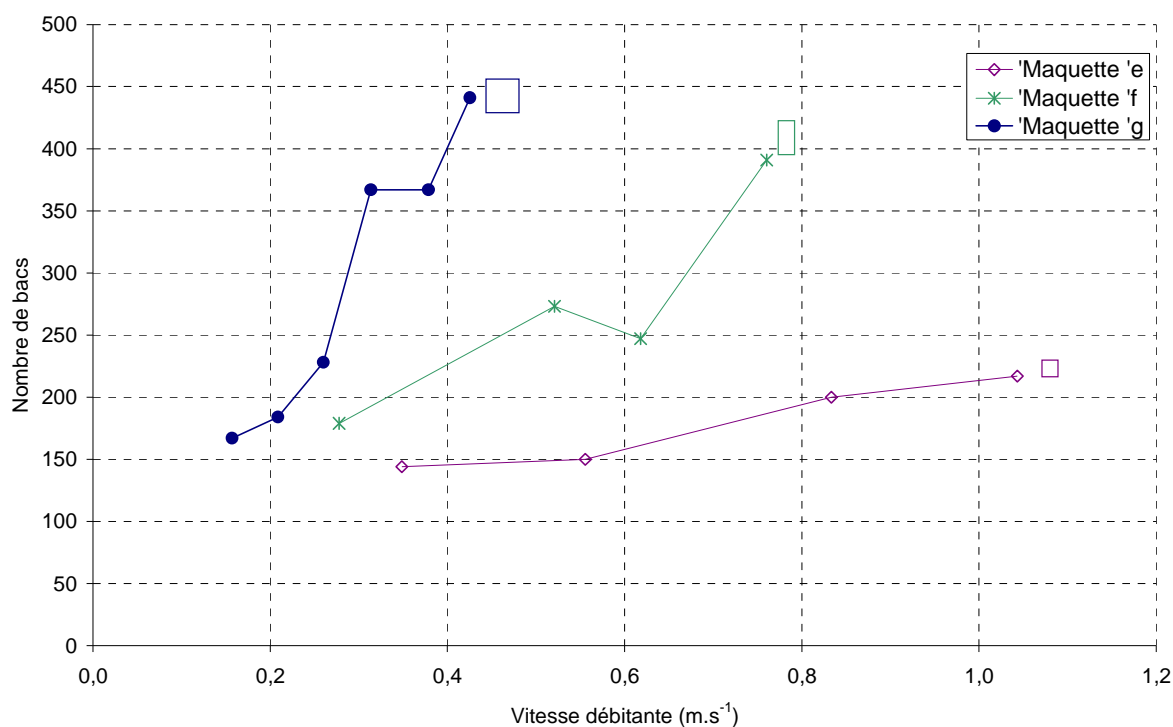


Figure VI.3 : Evolution du nombre de bacs en fonction de la vitesse débitante.

Pour une vitesse de passage constante, bien que déjà élevé, le nombre de bacs croît énormément d'une maquette à l'autre lorsque le diamètre hydraulique grossit. Ce résultat est compréhensible si l'on compare les Reynolds correspondants. En effet, plus le diamètre hydraulique est important, plus le nombre de Reynolds sera grand à iso-vitesse. Ainsi pour une vitesse de $0,3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, le nombre de Reynolds vaut respectivement 600, 800 et 1200 dans les maquettes 'e', 'f' et 'g'. Or le nombre de bacs a tendance à augmenter lorsque le Reynolds croît, d'où une nette différence entre les courbes de la figure VI.3.

Ces résultats sont intéressants. En effet, lors du processus d'extrapolation, si le paramètre à conserver est le temps de séjour, comme dans la majorité des applications, les DTS ne seront pas détériorées par l'augmentation de la taille des canaux et le caractère piston de l'écoulement sera même au contraire renforcé. Bien entendu, ceci n'est valable que dans la gamme de nombre de Reynolds examinée. En effet à forts Reynolds, correspondants à un régime turbulent, il faudrait s'attendre à voir l'apparition de mécanismes de rétro-mélange, bien connus sous le terme de mélange axial qui viendraient infirmer ce propos.

Si, comme pressenti, les différences observées sur la figure VI.3 sont dues aux variations des nombres de Reynolds, les courbes d'évolution du nombre de bacs en fonction de ce dernier devraient se regrouper autour des mêmes valeurs. La figure VI.4 nuance ce propos.

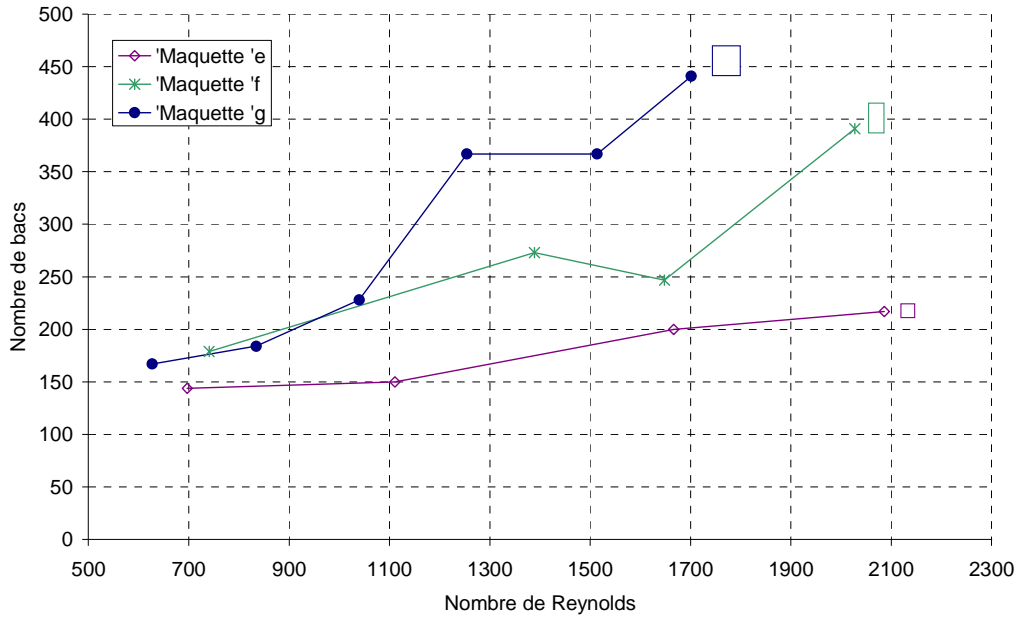


Figure VI.4 : Evolution du nombre de bacs en fonction du Reynolds.

En effet, la figure VI.4 montre bien que l'influence du nombre de Reynolds sur le nombre de bacs n'est pas négligeable, notamment pour les maquettes 'f' et 'g'. Par contre, même si les courbes se sont rapprochées par rapport au graphe VI.3, il persiste toujours un écart sur le nombre de bacs entre les trois configurations, d'autant plus important que le nombre de Reynolds est grand.

Cet effet peut être dû aux écarts en nombre de Dean. En effet, lorsque la taille des canaux augmente, le diamètre hydraulique augmente et le rayon de courbure interne diminue. Ces deux effets, couplés, agissent dans le même sens sur le nombre de Dean, qui, à iso-Reynolds, croît donc d'autant plus que la taille augmente. L'évolution du nombre de bacs en fonction du nombre de Dean 'interne' est représentée sur la figure VI.5.

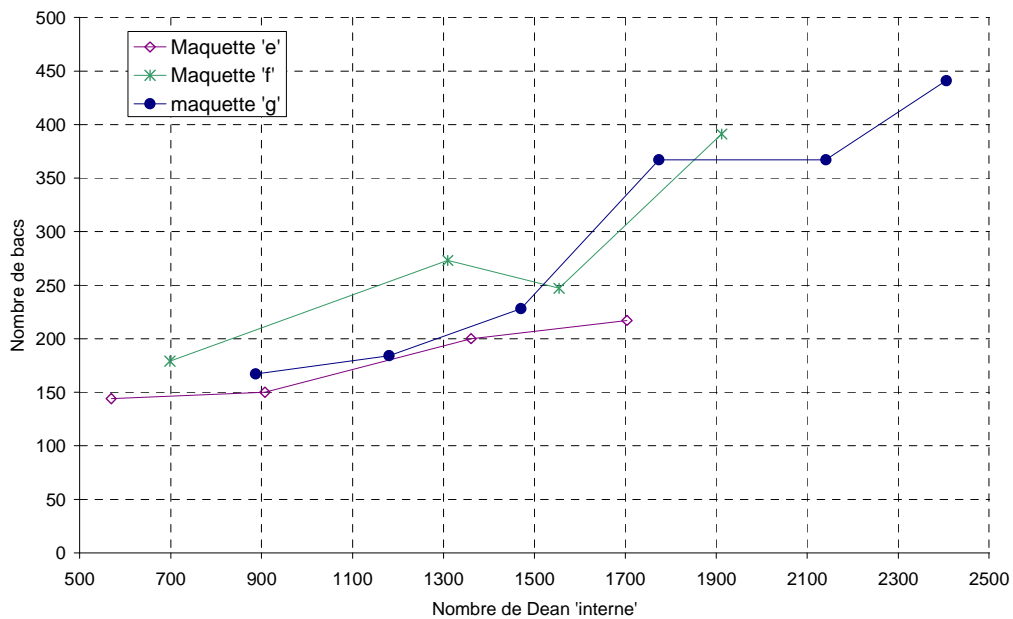


Figure VI.5 : Evolution du nombre de bacs avec le nombre de Dean 'interne'.

Les courbes sont cette fois quasiment superposées aux incertitudes expérimentales près. Le nombre de Dean 'interne' semble donc être le paramètre pertinent pour lequel le nombre de bacs est conservé. Pour les valeurs les plus faibles, les performances de la maquette 'f' sont légèrement meilleures sans doute à cause des effets de recirculations observés à plus faibles Reynolds (cf. paragraphe II.5). Cependant, les ordres de grandeur sont pratiquement identiques et toujours supérieurs à 100, garantissant un écoulement très proche du piston.

En conclusion, lors du changement de taille des canaux, les propriétés de l'écoulement ne sont pas diminuées. Au contraire, le caractère piston est renforcé lorsque l'on travaille à iso-vitesse (iso-temps de séjour) et même à iso-Reynolds. Le nombre de Dean 'interne' apparaît comme le paramètre caractéristique qui permet de conserver les propriétés de l'écoulement et notamment le nombre de bacs quelle que soit la taille des canaux. Ainsi la DTS n'est pas un facteur limitant pour l'extrapolation. Elle n'est pas détériorée par le changement de taille et le nombre de bacs est facilement prévisible puisqu'un coude correspond au minimum à un bac comme l'illustre la figure VI.6.

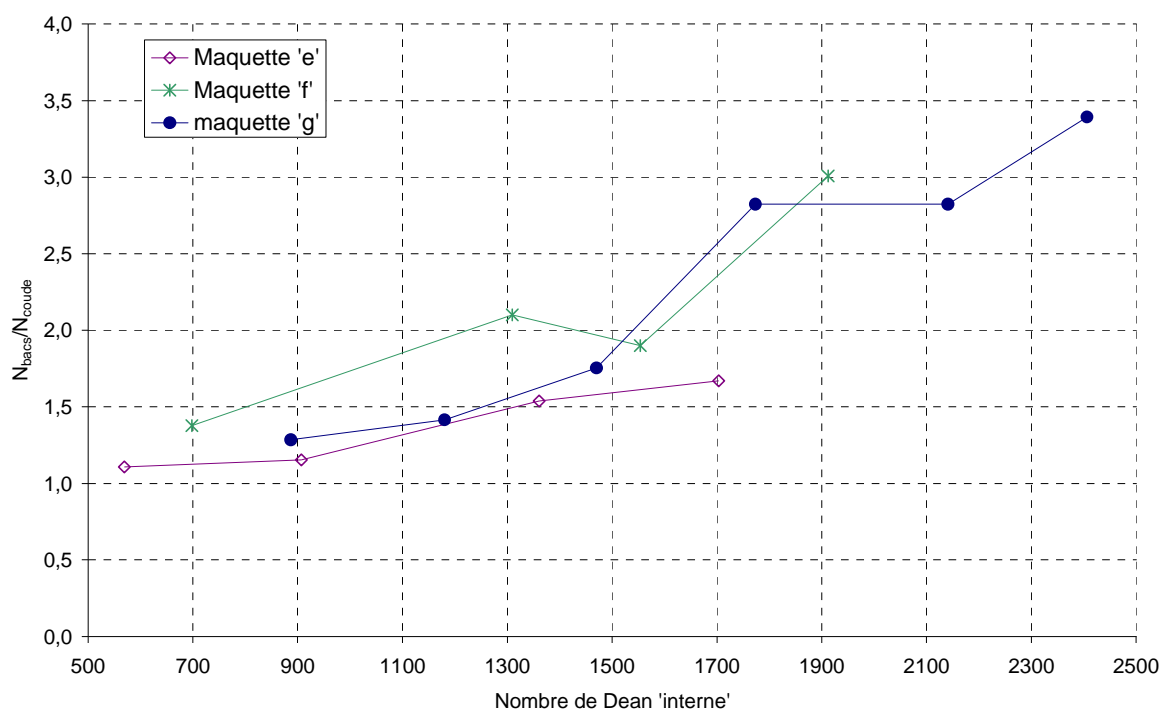


Figure VI.6 : Nombre de bacs par coude en fonction du nombre de Dean 'interne'.

De la même manière que pour les DTS, nous allons maintenant nous intéresser aux propriétés de mélange et les résultats de caractérisation du mélange global seront présentés en fonction des vitesses débitantes, du nombre de Reynolds et du nombre de Dean. C'est l'objet du paragraphe suivant.

VI.2.2 CARACTERISATION DU MELANGE

Les conditions opératoires pour la mise en œuvre de la décoloration de l'iode par le thiosulfate de sodium sont fournies dans le tableau VI.3 Les débits sont volontairement faibles afin de se situer dans la zone du nombre de Dean critique comme lors les caractérisations du

chapitre IV. Les résultats en temps de mélange et nombre de coudes nécessaires pour obtenir une décoloration complète sont également renseignés.

	Débit ($\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$)	Vitesse ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)	Nb de Reynolds	Nb de Dean 'interne'	Temps de mélange (s)	Nombre de coudes impliqués
Maq. 'e'	10,02	0,70	1392	984	0,07	2
	4,95	0,34	688	486	0,32	4
	2,21	0,15	307	217	1,29	7
	1,00	0,07	138	78	8,23	22
Maq. 'f'	9,92	0,34	919	750	0,15	2
	4,97	0,17	460	376	0,57	4
	2,25	0,08	209	170	4,22	13
	1,51	0,05	140	114	9,21	18
	1,01	0,04	94	77	16,19	22
Maq. 'g'	4,58	0,08	318	519	0,42	3
	3,03	0,05	210	343	1,16	6
	2,07	0,04	143	234	3,00	11

Tableau VI.3 : Conditions opératoires et résultats des expériences de caractérisation du mélange global.

Pour chaque géométrie, les temps de mélange décroissent rapidement lorsque le débit augmente avec un saut autour des valeurs de Dean de 150 qui correspond au seuil critique au-delà duquel apparaissent les vortex de Dean. Les nombres de Dean 'interne' dépendent des diamètres hydrauliques et des rayons de courbure à l'intérieur du coude ainsi le seuil de 150 ne correspond pas à des vitesses débitantes identiques pour toutes les maquettes. D'où de fortes disparités observées sur la figure VI.7.

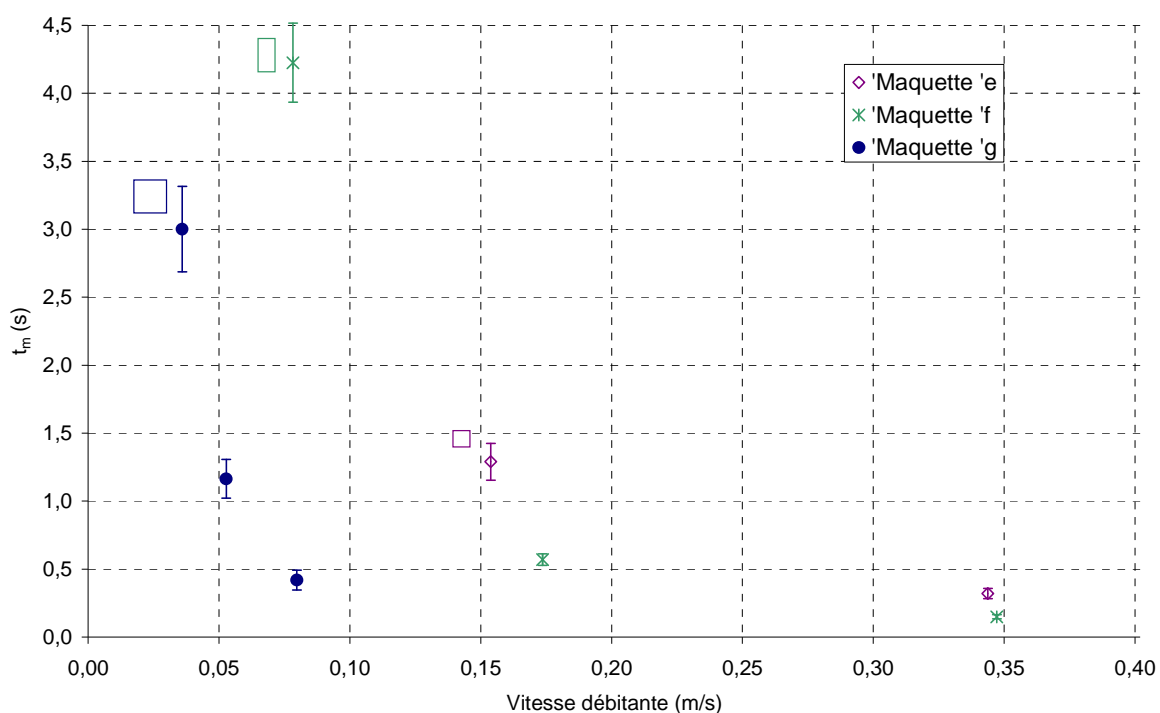


Figure VI.7 : Evolution du temps de mélange avec la vitesse débitante pour les maquettes 'e' (2/2), 'f' (2/4) et 'g' (4/4).

A iso-vitesse, la maquette 'g' est nettement plus efficace dans le processus de mélange des réactifs. Les nombres de Dean correspondants varient en effet de 230 à 520 alors que pour des vitesses équivalentes, il vaut au maximum 170 dans la maquette 'f' et 80 dans la maquette 'e'.

Si, à iso-vitesse, les disparités en temps de mélange sont effectivement dues aux variations du nombre de Dean de par les changements de diamètre hydraulique et de rayon de courbure, on peut donc s'attendre à ce que l'évolution du temps de mélange en fonction de celui-ci homogénéise les résultats pour chaque maquette. C'est ce que montre clairement la figure VI.8.

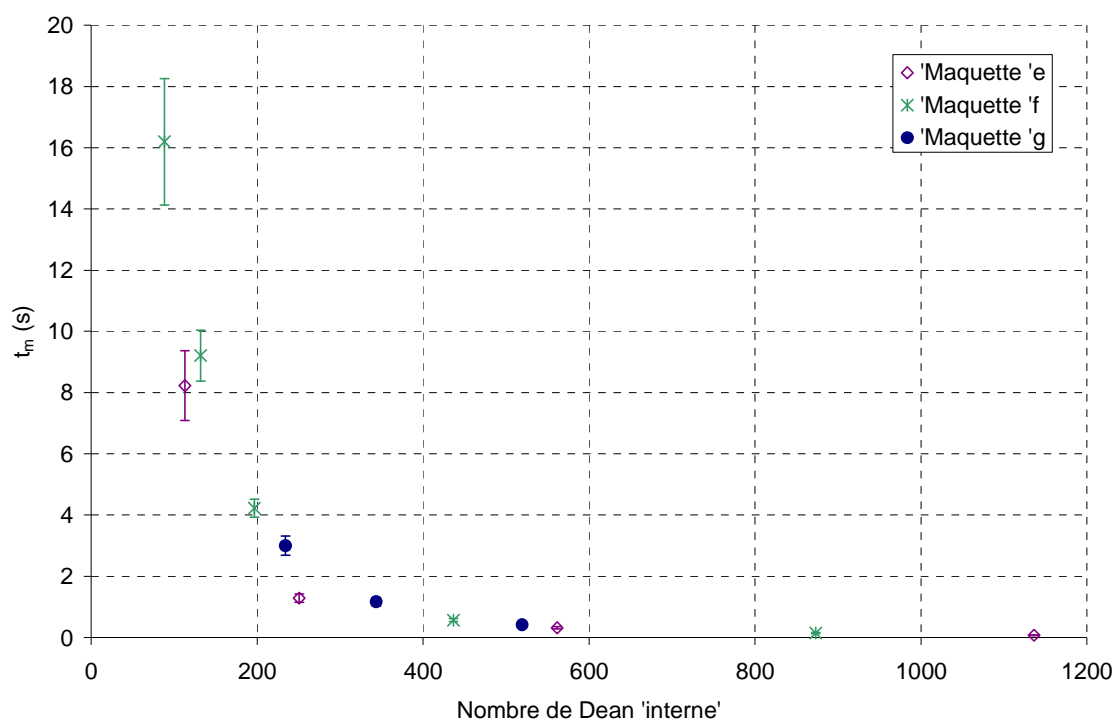


Figure VI.8 : Evolution du temps de mélange avec le nombre de Dean 'interne'.

Les courbes sont effectivement superposées traduisant bien la dépendance en Dean des temps de mélange. Comme pour les DTS, c'est donc ce dernier qui pilote le temps de mélange dans les maquettes, et ce quelle que soit la géométrie. La même tendance est observée sur l'évolution du nombre de coudes nécessaires à l'homogénéisation du milieu (cf. figure VI.9).

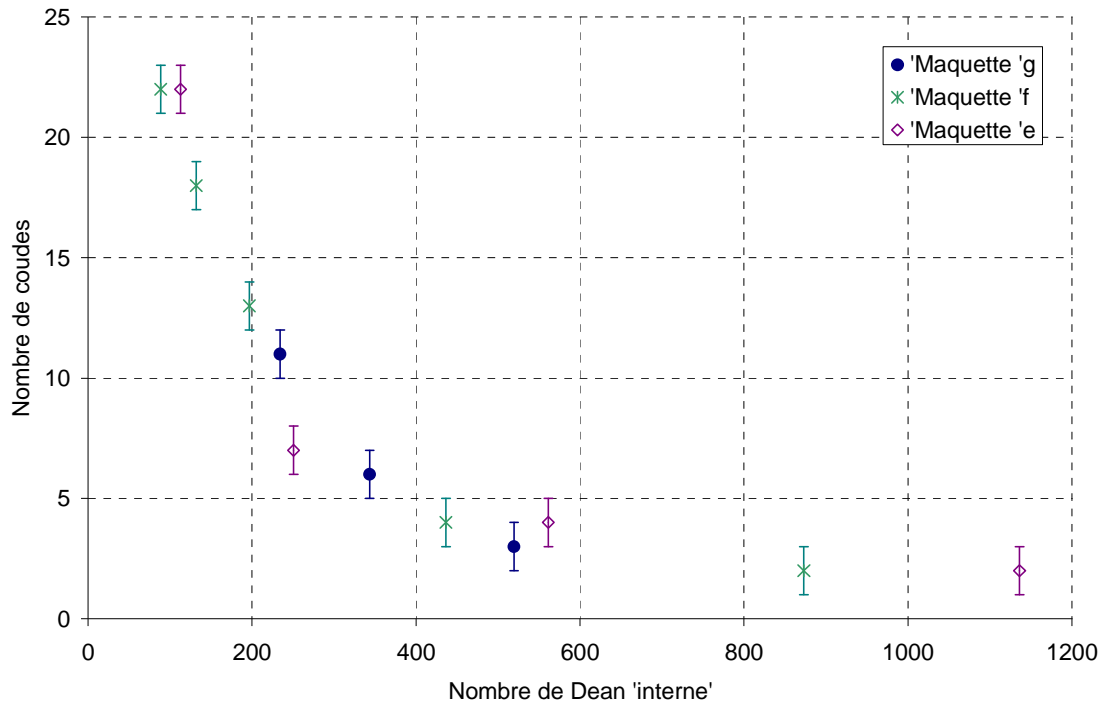


Figure VI.9 : Nombre de coudes nécessaires à la décoloration complète du milieu en fonction du nombre de Dean.

Pour un même nombre de Dean, le nombre de coudes nécessaires au mélange est égal. Dans les trois maquettes, les longueurs droites entre chaque coude sont rigoureusement identiques ($L_d=20,28$ mm). Elles n'ont donc pas d'impact sur le mélange lorsque les dimensions du canal changent. Or, comme les résultats expérimentaux l'ont montré dans les chapitres III et IV, elles devraient impacter l'écoulement en jouant sur la persistance, plus ou moins longue, des recirculations. Le graphe VI.9 semble montrer que ce n'est pas le cas lorsque la taille des canaux varie puisque les courbes expérimentales se superposent. Afin d'expliquer ce résultat, au premier abord paradoxal, nous avons réalisé des simulations numériques dans chaque géométrie pour visualiser les boucles de recirculation dans plusieurs sections de passage le long d'une longueur droite en aval d'un coude. On observe alors que, quelle que soit la taille du canal, à iso-Dean, les vortex disparaissent tous entre les sections S4 et S5 soit entre 15 et 20 mm. Un exemple est présenté figure VI.10 dans le cas de la maquette 'e'.

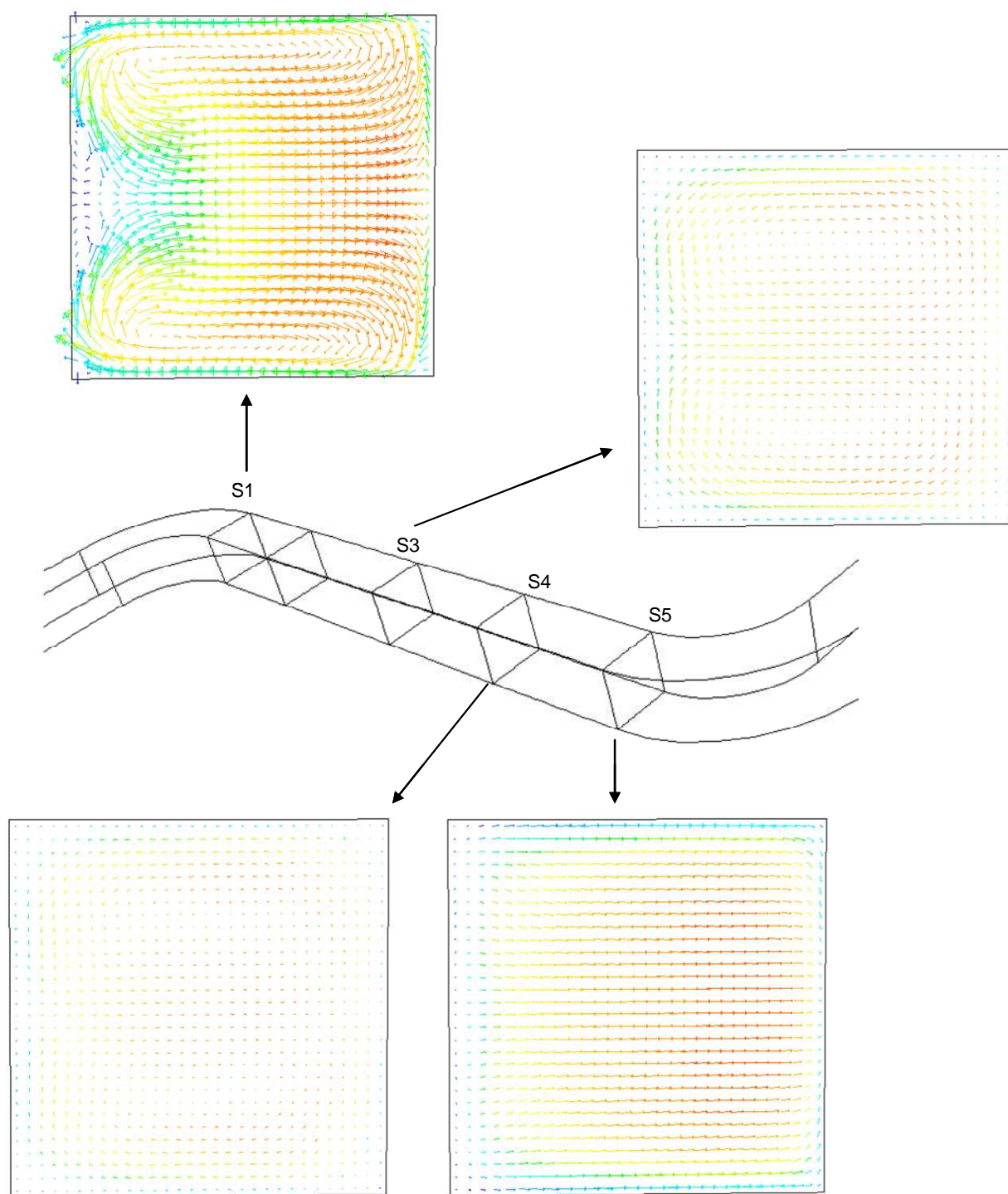


Figure VI.10 : Visualisation des boucles de recirculation au niveau des sections de passage 1, 3, 4 et 5 dans la maquette 'e' pour une vitesse de $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$.

Le code couleur correspond à la vitesse axiale, dont on remarque que le maximum est légèrement décentré. Les boucles de recirculation, très marquées dans la section en sortie de coude (S1) sont toujours présentes dans la section S4 mais de très faible intensité tandis qu'elles ont disparu au niveau de l'entrée du coude suivant (S5). Les mêmes observations ont été faites dans les géométries 'f' et 'g'.

Comme le paramètre-clé semble être le nombre de Dean, des variations en temps de mélange sont aussi logiquement observées lorsque le nombre de Reynolds varie comme le montre la figure VI.11.

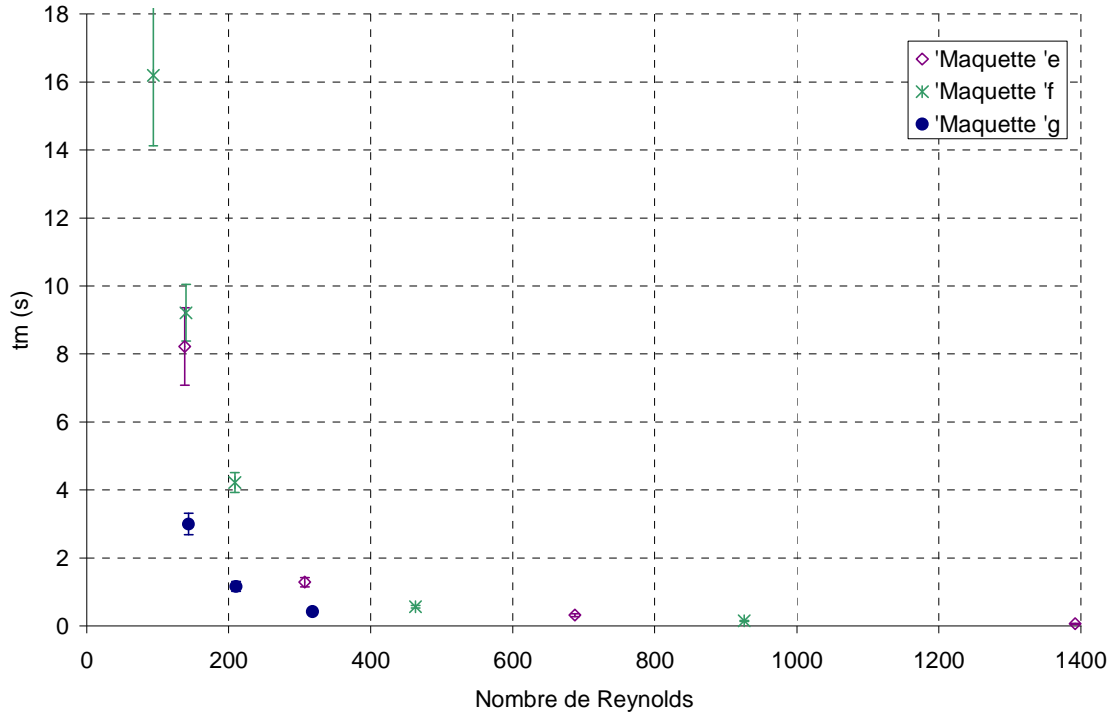


Figure VI.11 : Temps de mélange en fonction du nombre de Reynolds.

Le rayon de courbure interne est le même entre les maquettes 'e' et 'f', donc lorsque le nombre de Reynolds est identique, le ratio entre les nombres de Dean vaut dans ces conditions :

$$\frac{De_e}{De_f} = \frac{Re_e}{Re_f} \cdot \sqrt{\frac{d_{h_e}}{d_{h_f}}} = 1 \cdot \sqrt{\frac{2}{2,67}} = 0,9$$

Le ratio étant proche de 1, les courbes caractéristiques des maquettes 'e' et 'f' sont quasiment superposées. Ce n'est pas le cas entre les maquettes 'g' et 'e' puisque le ratio entre les nombres de Dean vaut :

$$\frac{De_e}{De_g} = \frac{Re_e}{Re_g} \cdot \sqrt{\frac{d_{h_e}/R_{c_e}}{d_{h_g}/R_{c_g}}} = 1 \cdot \sqrt{\frac{2/3}{4/2}} = 0,6$$

d'où de plus grandes disparités entre les points expérimentaux à iso-Reynolds.

Finalement, le changement de taille ne dégrade pas les performances de l'écoulement en termes de mélange. Si l'on travaille à iso-vitesse ou iso-Reynolds, les temps de mélange sont

même diminués lorsque la taille du canal augmente. C'est en fait le nombre de Dean qui pilote le mélange global. Ce sera donc le paramètre caractéristique à conserver lors du processus d'extrapolation.

Que ce soient les DTS ou le mélange, ces deux phénomènes ne sont pas limitants lors du processus de changement de taille. L'intérêt se porte donc maintenant sur les performances thermiques et l'évolution des pertes de charge lorsque les dimensions des canaux augmentent. C'est l'objet des deux paragraphes suivants.

VI.2.3 CARACTERISATION DES PERTES DE CHARGE

Les pertes de charge ont été mesurées pour de l'eau à 25°C ($\rho=997 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ et $\mu=9\cdot 10^{-4} \text{ Pa}\cdot\text{s}$) et une solution de glycérol à 67% massique et à 25°C ($\rho=1160 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ et $\mu=12\cdot 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$). Le tableau VI.4 fournit les conditions opératoires mises en œuvre dans les maquettes 'e', 'f' et 'g'.

	Gamme de débit ($\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$)	Gamme de vitesse ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)	Gamme de Reynolds	Gamme de Dean 'interne'
Maquette 'e' Eau	3,98 à 18,23	0,28 à 1,27	597 à 2770	487 à 2260
Maquette 'e' Glycérol	1,86 à 20,04	0,11 à 1,19	21 à 240	17 à 196
Maquette 'f' Eau	1,31 à 23,21	0,05 à 0,81	130 à 2347	123 à 2213
Maquette 'f' Glycérol	1,96 à 20,93	0,06 à 0,63	15 à 167	15 à 157
Maquette 'g' Eau	6,40 à 24,22	0,11 à 0,42	479 à 1816	677 à 2558
Maquette 'g' Glycérol	1,80 à 21,10	0,03 à 0,37	11 à 129	16 à 183

Tableau VI.4 : Conditions opératoires pour les mesures de pression différentielle.

La viscosité du glycérol étant 10 fois plus élevée que celle de l'eau, celui-ci permet de réaliser des mesures de perte de charge pour des valeurs de Reynolds relativement faibles ($Re < 250$) élargissant ainsi la gamme couverte avec l'eau comme fluide d'étude. Les graphes de la figure VI.12 représentent l'évolution des pertes de charge linéiques pour chacun des deux fluides lorsque la vitesse débitante varie.

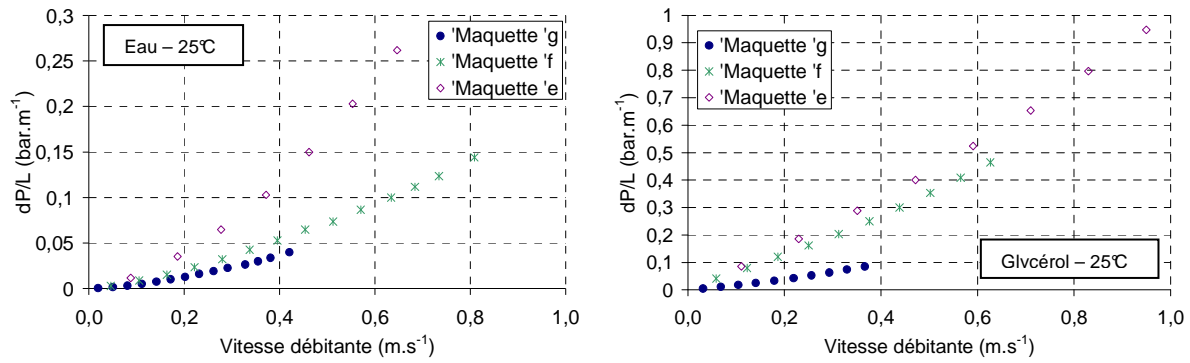


Figure VI.12 : Evolution de la perte de charge linéique en fonction de la vitesse débitante. Eau à 25°C (à gauche) et glycérol à 67% m. et 25°C (à droite).

Comme on peut s'y attendre, à iso-vitesse, les pertes de charge sont d'autant plus grandes que le diamètre hydraulique diminue. Leur expression est la suivante :

$$\Delta P = \Lambda \cdot \frac{L}{d_h} \cdot \frac{1}{2} \cdot \rho \cdot v^2$$

avec Λ le coefficient de Darcy qui s'écrit :

$$\Lambda = a \cdot \text{Re}^{-b}$$

a et b étant supérieurs à zéro.

Pour une vitesse constante, lorsque le diamètre hydraulique diminue, le nombre de Reynolds diminue également impliquant une augmentation du coefficient de Darcy et donc des pertes de charge. C'est bien ce que l'on obtient expérimentalement.

Pour comparer les géométries entre elles, il est donc intéressant de tracer l'évolution du coefficient de Darcy avec le nombre de Reynolds.

En régime laminaire, les pertes de charge dans un canal de section rectangulaire sont plus importantes que dans un canal de section carrée. Les corrélations reliant le coefficient de Darcy au nombre de Reynolds s'écrivent en effet (*Idel'Cik, p.67, 1986*) :

$$\Lambda_{\text{carré}} = 0,9 \cdot \frac{64}{\text{Re}}$$

et

$$\Lambda_{\text{rect}} = \frac{64}{\text{Re}}$$

Ainsi, logiquement, en régime très laminaire ($\text{Re} < 100$), les pertes de charge dans la maquette 'f' sont supérieures à celles des maquettes 'e' et 'g'. La figure VI.13 illustre ces propos.

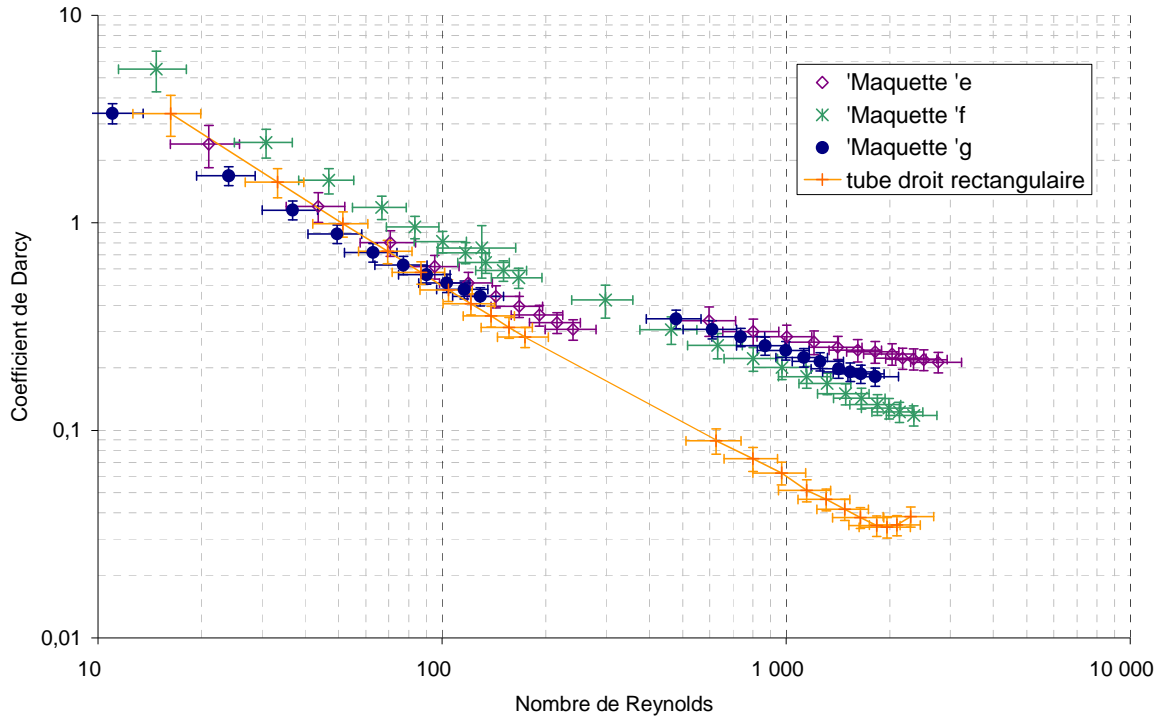


Figure VI.13 : Evolution du coefficient de Darcy en fonction du nombre de Reynolds. Mesures avec du glycérol à 67% massique à 25°C ($Re < 200$) et de l'eau à 25°C ($Re > 400$).

Les pertes de charge dans le tube droit en acier inoxydable ($2 \times 4 \text{ mm}^2$) sont également légèrement supérieures à celles des maquettes de section carrée pour les nombres de Reynolds très faibles, c'est a priori l'effet du facteur de forme. L'influence de ce dernier sur le facteur de friction est représentée sur la figure VI.14 issue de l'ouvrage de Shah & London (1978, p.200).

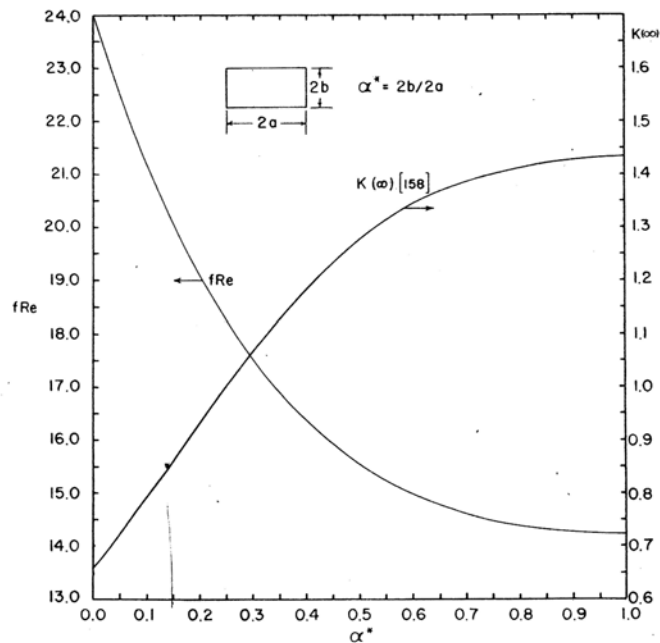


Figure VI.14 : Evolution du facteur de friction en fonction du facteur de forme en régime laminaire (Shah & London, 1978, p.200).

Cependant la courbe caractéristique du tube rectiligne passe rapidement en dessous de celles des maquettes. En effet, la rupture de pente, signifiant le changement de régime du laminaire vers le transitionnel voire le turbulent s'opère pour des Reynolds de l'ordre de 200 dans les canaux ondulés contre 2000 dans le cas du tube droit.

Pour un Reynolds constant, le changement de taille des canaux n'est pas sans effet sur le facteur de friction. Lorsque le facteur de forme est identique (maquettes 'e' et 'g'), il diminue quand le diamètre augmente. Les caractérisations précédentes ont montré que le nombre de Dean était le paramètre pilotant les performances, il est donc intéressant de tracer l'évolution du coefficient de Darcy en fonction du nombre de Dean 'interne' (cf. figure VI.15).

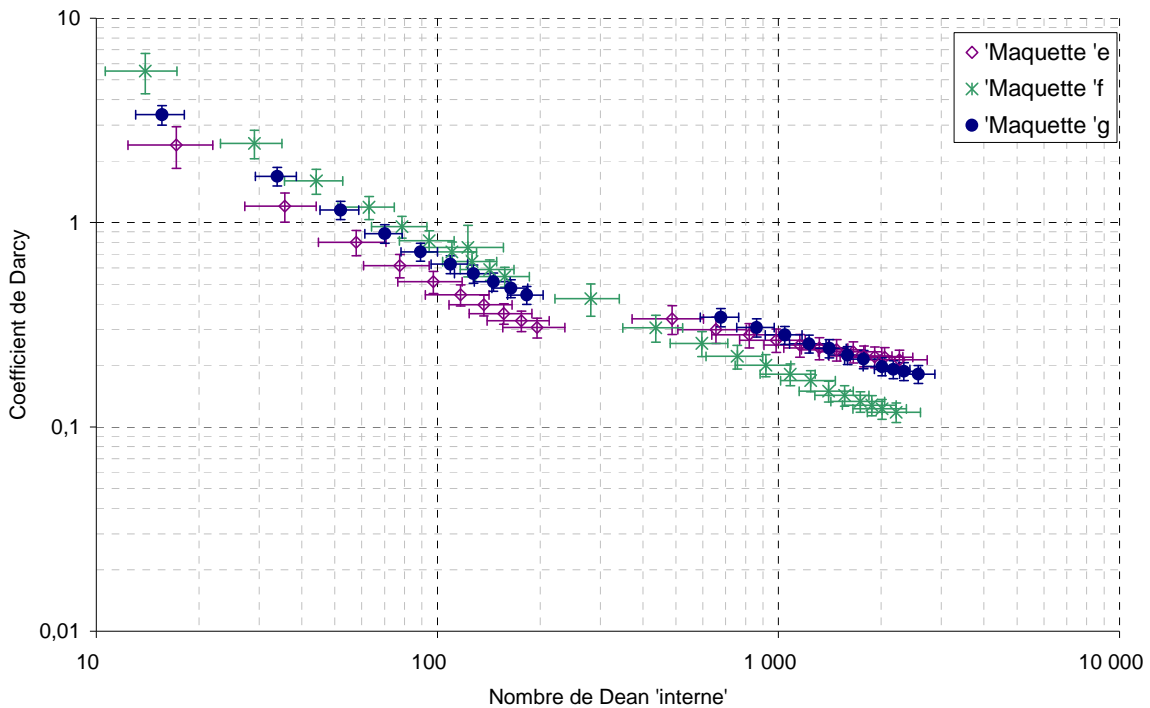


Figure VI.15 : Evolution du coefficient de Darcy en fonction du nombre de Dean. Eau à 25°C ($Re > 200$) et glycérol 67%*m.* à 25°C ($Re < 200$).

Les courbes expérimentales mettent en évidence deux tendances de part et d'autre de $Re=200$. Pour les Reynolds inférieurs à cette valeur, les courbes des maquettes 'e' et 'g' ne se superposent pas aussi bien que celles du graphe VI.13 (écarts de l'ordre de 30% contre 15% sur le graphe de la figure VI.13). Il semblerait donc que le paramètre caractéristique soit le nombre de Reynolds en régime très laminaire. En fait, dans ces conditions d'écoulement, le nombre de Dean est inférieur à sa valeur critique (~ 150), il n'y a donc aucune raison pour qu'il caractérise les propriétés de l'écoulement. Quelle que soit la taille du canal (2 ou 4 mm), une corrélation peut être établie entre le coefficient de Darcy et le nombre de Reynolds :

$$\Lambda = \frac{21,3}{Re^{0,78}} \tag{VI-3}$$

Lorsque le nombre de Reynolds devient supérieur à 200, l'apparition des vortex de Dean modifie l'écoulement. Dans ce cas, le coefficient de Darcy est dépendant du nombre de Dean et c'est ce dernier qui caractérise l'écoulement lors du changement de taille, toujours pour un facteur de forme identique. C'est ce qu'illustre la figure VI.16. Les résultats expérimentaux permettent alors d'établir la corrélation suivante :

$$\Lambda = 3,68 \cdot De_i^{-0,38} \quad (VI-4)$$

Finalement l'effet du facteur de forme n'est pas anodin sur les pertes de charge. Si en régime laminaire, la section de passage rectangulaire provoque une hausse du facteur de friction, que l'on a vérifié expérimentalement, les mesures en régime transitoire et/ou turbulent démontrent une tendance inverse, la géométrie 'f' devenant moins coûteuse en énergie que les autres.

VI.2.4 PERFORMANCES THERMIQUES

VI.2.4.1 Coefficient de transfert de chaleur global

Pour caractériser les coefficients de transfert globaux dans les maquettes, les mesures de température le long du canal ondulé sont effectuées lorsque l'on refroidit le fluide 'procédé' entrant à 75°C. Pour chaque maquette les quantités de chaleur échangées sont calculées à partir des relevés de température entre l'entrée du canal 'procédé' et le 1^{er} thermocouple situé à une distance L dont les valeurs figurent dans le tableau suivant (tableau VI.5). Les conditions opératoires en termes de débits et de vitesse notamment sont également fournies. Le débit de l'eau de refroidissement est fixé à 100 L·h⁻¹ pour une température de 14°C, les canaux 'utilité' étant identiques pour chaque maquette.

	L (mm)	\dot{m}_p (kg·h ⁻¹)	T_p^{in} (°C)	v_p (m·s ⁻¹)	Re_p	De_i
Maq. 'e'	252,2	1,26 à 16,47	75	0,09 à 1,16	327 à 5910	267 à 4825
Maq. 'f'	135,8	1,13 à 17,08	75	0,04 à 0,60	202 à 4206	190 à 3966
Maq. 'g'	252,2	3,06 à 16,90	75	0,05 à 0,30	448 à 2970	634 à 4200

Tableau VI.5 : Conditions opératoires pour la caractérisation des performances thermiques lors du changement de taille.

Les mesures expérimentales de température permettent d'accéder à la quantité de chaleur échangée, Q (W), et au coefficient de transfert global, U (W·m⁻²·K⁻¹), pour chaque condition de débit, selon le bilan classique suivant :

$$Q = \dot{m} \cdot C_p \cdot \Delta T$$

et

$$U = \frac{Q}{A \cdot \Delta T_{mi}}$$

Où A correspond à l'aire d'échange impliquée dans le transfert de chaleur, c'est-à-dire dans notre cas la face supérieure du canal procédé en contact avec la plaque d'aluminium. Elle est représentée sur la figure IV.16 (face bleue).

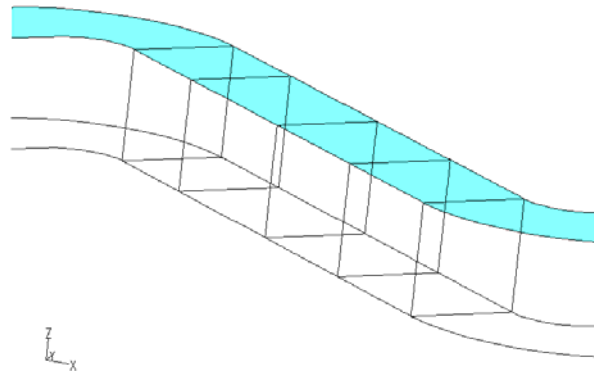


Figure VI.16 : Représentation schématique d'une portion de canal. L'aire d'échange correspond à la surface bleutée.

Afin de comparer les performances thermiques des maquettes, il est intéressant de tracer l'évolution du coefficient de transfert de chaleur global en fonction de la vitesse débitante. C'est ce que représente la figure VI.17.

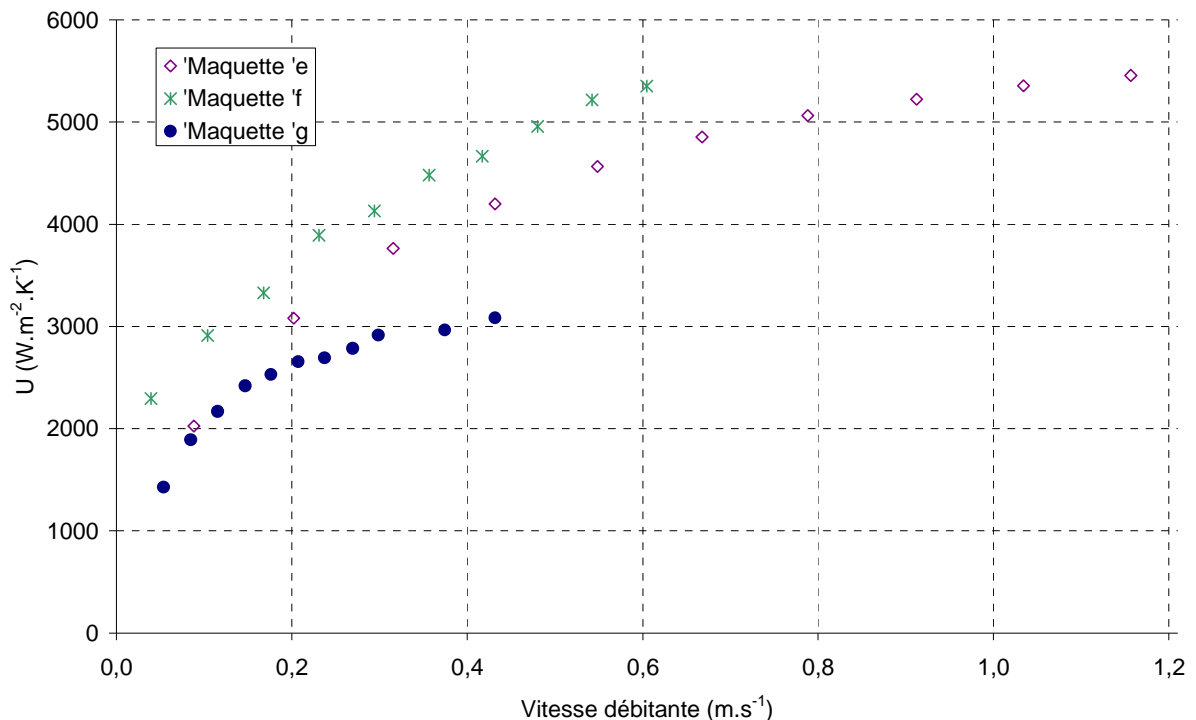


Figure VI.17 : Evolution du coefficient de transfert de chaleur global en fonction de la vitesse débitante.

A iso-vitesse, les coefficients de transfert dans la maquette 'e' sont supérieurs à ceux de la maquette 'g'. Pour un facteur de forme identique ($b/a=1$, i.e. une section carrée), l'effet du diamètre hydraulique ne semble donc pas négligeable. Lorsqu'il diminue de 4 à 2 mm, le coefficient de transfert de chaleur global croît de 15 à 30%.

De même, la diminution du facteur de forme de 1 à 0,5, améliore le coefficient de transfert de chaleur de 15% (maquettes 'e' et 'f'). Cependant, les diamètres hydrauliques des maquettes 'e' et 'f' ne sont pas identiques (respectivement 2 et 2,67 mm). Il aurait fallu comparer les performances de la maquette 'f' avec celle d'une géométrie de section de passage carrée et de diamètre hydraulique égal à 2,67 mm. On peut s'attendre néanmoins à ce que les performances d'une telle géométrie soient situées entre celles des maquettes 'e' et 'g'. Dans ce cas, les 15% d'intensification de la maquette 'f' par rapport à la maquette 'e' pourraient même être sous-estimés. Evidemment, cette hypothèse est à vérifier à partir de données expérimentales établies dans la géométrie adéquate.

Une autre manière de comparer les performances de chaque maquette est de considérer le facteur d'intensification, UA/V ($W \cdot m^{-3} \cdot K^{-1}$) où V correspond au volume de fluide réactionnel engagé dans l'échange thermique et A , à l'aire d'échange précédemment décrite (cf. figure VI.16). Le tableau VI.6 fournit les valeurs du ratio surface/volume pour chaque géométrie.

a, b et L correspondent respectivement à la hauteur du canal, à sa largeur et à la longueur entre l'entrée et le 1^{er} thermocouple.

	a (mm)	b(mm)	L (mm)	$A_{réelle}$ (m^2)	V_{fluide} (mL)	(A/V) (m^{-1})
Maquette 'e'	2	2	252,2	$5,2 \cdot 10^{-4}$	1,04	500
Maquette 'f'	4	2	135,8	$2,9 \cdot 10^{-4}$	1,09	250
Maquette 'g'	4	4	252,2	$1,1 \cdot 10^{-3}$	4,40	250

Tableau VI.6 : Caractéristiques géométriques et rapports surface/volume des maquettes 'e', 'f' et 'g'.

La figure VI.18 représente l'évolution du facteur d'intensification, $U \cdot A/V$, en fonction de la vitesse débitante.

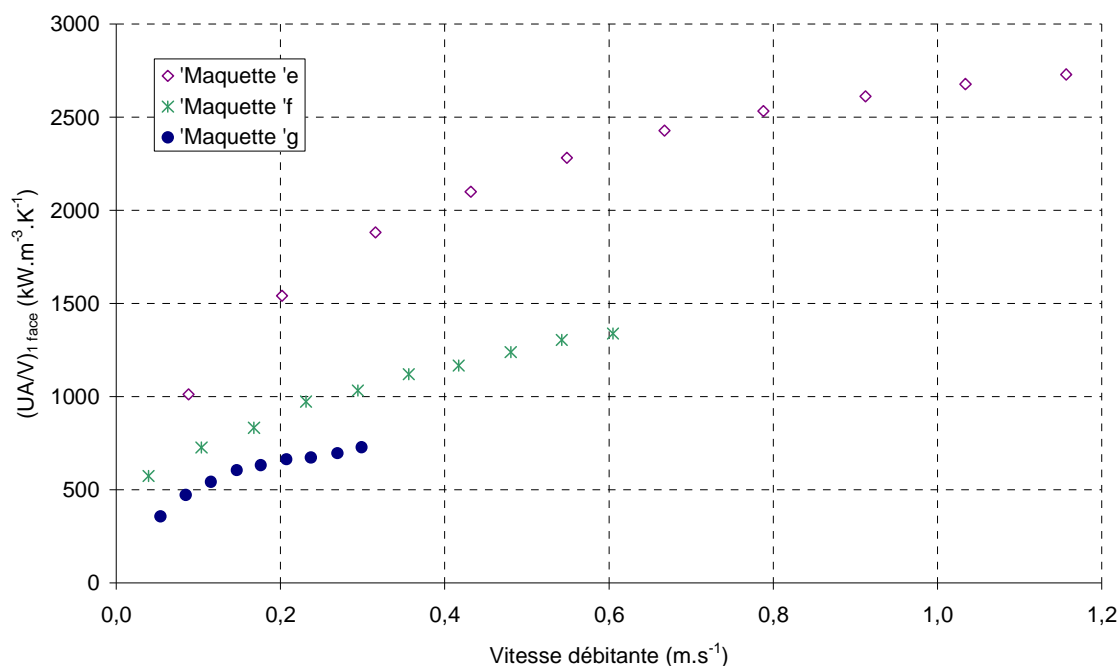


Figure VI.18 : Facteur d'intensification en fonction de la vitesse. A correspond à la surface du canal en contact avec la plaque de refroidissement et V au volume de fluide réactionnel correspondant.

L'effet de la taille du canal sur l'échange de chaleur lorsque le facteur de forme est constant et égal à 1 est renforcé par rapport au graphe de la figure VI.17. Le facteur d'intensification augmente de 73 à 88% lorsque le diamètre hydraulique passe de 4 à 2 mm. C'est en fait l'impact du ratio surface/volume qui augmente logiquement (d'un facteur 2) lorsque le diamètre hydraulique diminue de 4 à 2 mm. Le tableau VI.6 illustre ces propos puisque A/V passe de 250 (maquette 'g') à 500 m^{-1} (maquette 'e').

En revanche et contrairement aux résultats concernant le coefficient global d'échange de chaleur (figure VI.17), les valeurs du facteur d'intensification de la maquette 'f' sont intermédiaires par rapport à celles des maquettes 'e' et 'g'. Ce résultat est dû au ratio surface/volume qui est calculé à partir de l'aire d'échange en contact avec la plaque d'aluminium. Dans le cas de la maquette 'f', c'est le 'petit' côté ($b=2 \text{ mm}$) qui échange avec la plaque de refroidissement d'où un ratio A/V peu important (250 m^{-1}) qui entraîne une diminution du facteur d'intensification par rapport aux autres géométries.

Nous tenons à faire remarquer que l'échange sur une seule des quatre faces est dû à l'agencement des maquettes en plexiglas. Dans le cas de dispositifs 'pilotes' dans lesquels pourront être mises en œuvre des synthèses chimiques, l'échange aura évidemment lieu directement sur les 2 faces du canal adjacentes aux plaques utilisées, et sur les deux autres faces en prenant en compte la conduction dans la matière. Nous avons donc représenté sur la figure VI.19, le facteur d'intensification évalué à partir de l'aire d'échange égale aux quatre faces des canaux, $(U \cdot A/V)_{4 \text{ faces}}$, en fonction de la vitesse. Pour les maquettes 'e', 'f' et 'g', la nouvelle aire d'échange, $A_{4 \text{ faces}}$, est respectivement égale à 2000, 1500 et 1000 m^{-1} .

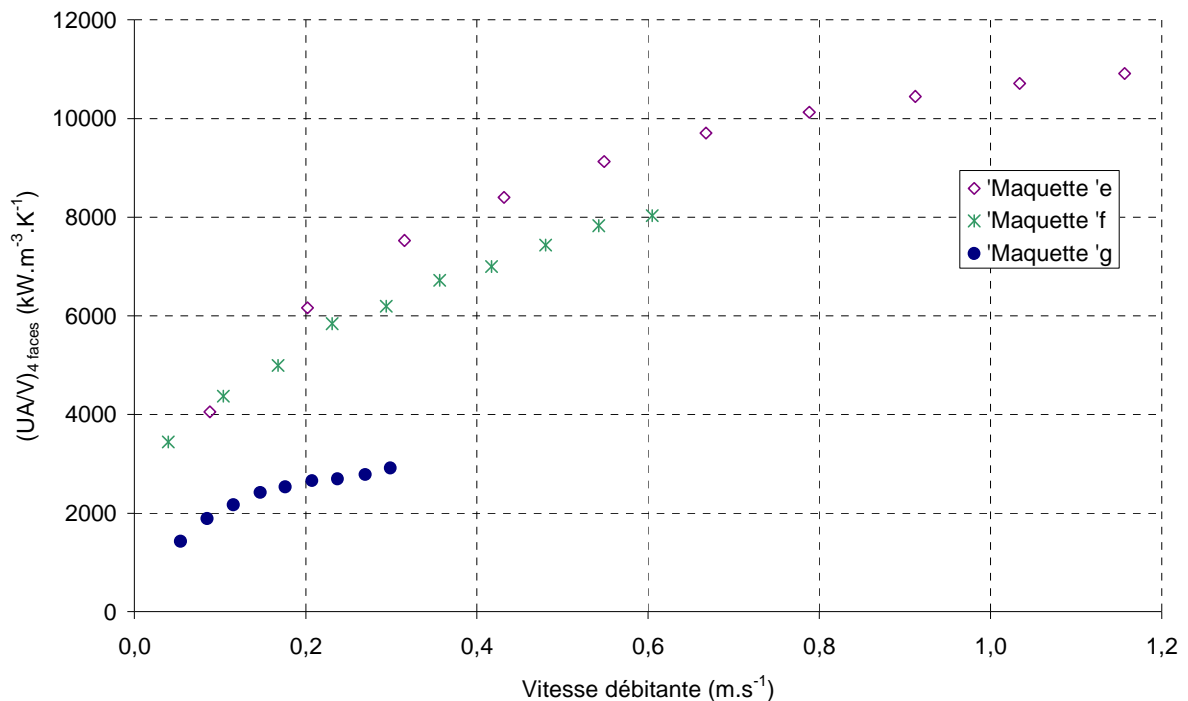


Figure VI.19 : Facteur d'intensification en fonction de la vitesse. A correspond à la surface des 4 faces du canal et V au volume de fluide réactionnel correspondant.

On constate alors que la courbe caractéristique de la maquette 'f' se rapproche de celle de la maquette 'e', ses performances sont moins sous-estimées. En outre, le facteur d'intensification augmente bien avec la vitesse débitante et dans les deux cas (figures VI.18 et VI.19), lorsque la taille du canal diminue, les performances sont aussi améliorées. Cependant, le diamètre hydraulique et le facteur de forme varient tous deux en même temps, il est donc délicat de comparer ces maquettes directement entre elles.

Pour s'affranchir de cela, il est nécessaire de tracer l'évolution du nombre de Nusselt en fonction du Reynolds.

VI.2.4.2 Nombre adimensionnels et corrélations

En régime laminaire, nous savons déjà que l'influence du facteur de forme sur les performances thermiques n'est pas négligeable (*Shah & London, 1978*). Dans des conditions opératoires telles que l'échange ne se fait que par une face du canal (petit côté), le nombre de Nusselt croît lorsque le facteur de forme se rapproche de 1 (cf. cas n°4 de la figure VI.20).

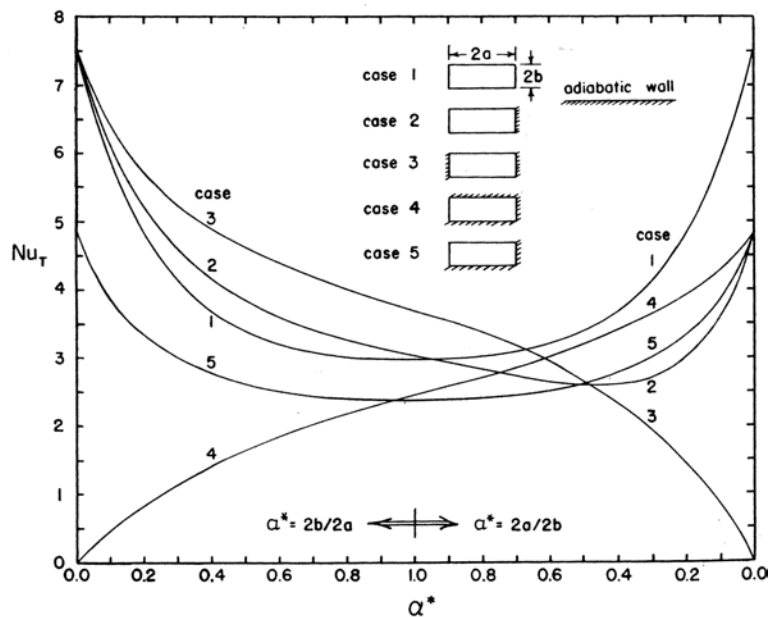


Figure VI.20 : Evolution du nombre de Nusselt (pour une température de paroi constante) en fonction du facteur de forme et en régime laminaire. La maquette 'f' correspond au cas n°4 avec $\alpha^* = 2b/2a = 0,5$ (*Shah & London, 1978*).

La figure VI.21 représente l'évolution du nombre de Nusselt en fonction du Reynolds pour les maquettes 'e', 'f' et 'g'.

Il est important de noter que le nombre de Nusselt a été déterminé de la même manière et selon les mêmes hypothèses que celles établies au chapitre IV, paragraphe IV.2.2.1.

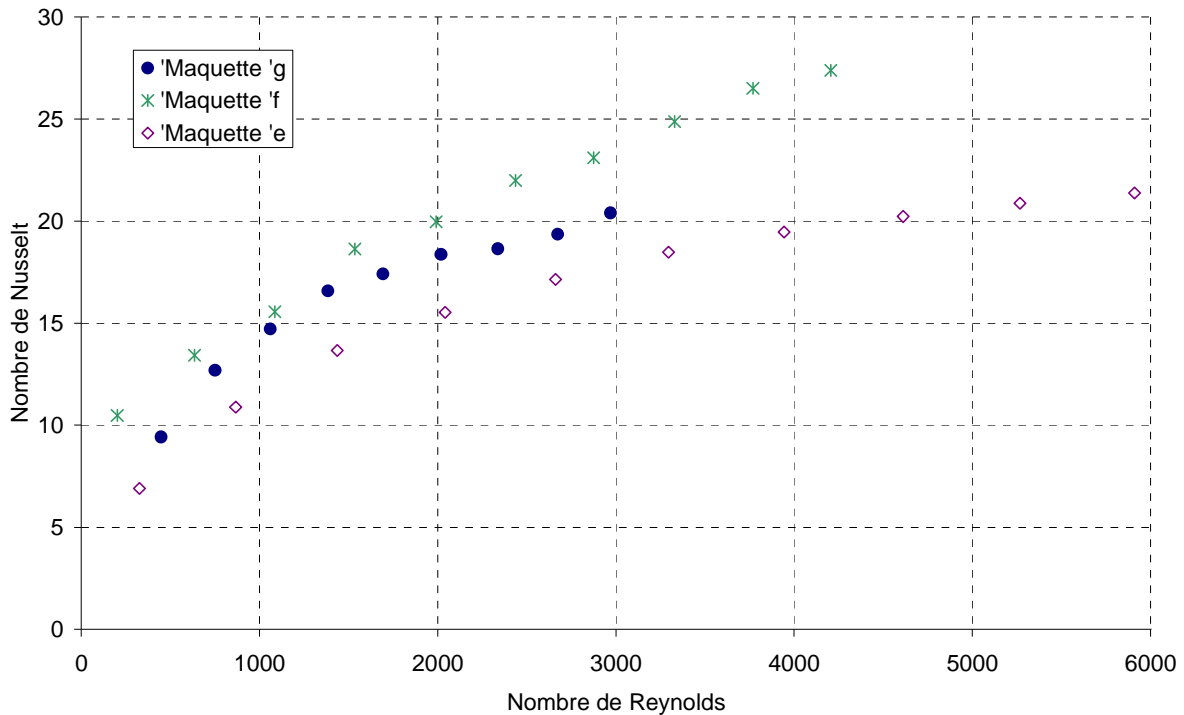


Figure VI.21 : Nombre de Nusselt en fonction du nombre de Reynolds lors du changement de taille.

Ce graphe met en évidence deux résultats intéressants.

Le premier concerne l'influence du facteur de forme. Contrairement à ce que prédisent Shah & London (1978), le nombre de Nusselt de la géométrie 'f' ($b/a=0,5$) est supérieur à celui des géométries de section carrée ($b/a=1$) même dans les régimes laminaires ($Re < 2000$). La différence entre les deux cas d'étude concerne la structure du canal. En effet, Shah & London ont étudié un écoulement laminaire dans une conduite rectiligne, ce qui n'est évidemment pas notre cas. Nous avons montré, en outre, que les boucles de recirculation secondaires dans les canaux ondulés se formaient très rapidement ($De \approx 150$ soit Re entre 110 et 180 pour nos géométries) et qu'elles étaient plus nombreuses dans le cas de sections rectangulaires (§ III.2.2.2.c). La figure VI.22 illustre ces propos. Il s'agit des profils de vitesse dans des sections perpendiculaires à l'écoulement principal situées en aval d'un coude, pour les trois maquettes 'e', 'f' et 'g' à iso-Reynolds ($Re=400$). Le code couleur correspond à l'intensité de la vitesse axiale et la taille des flèches à l'intensité des recirculations radiales :

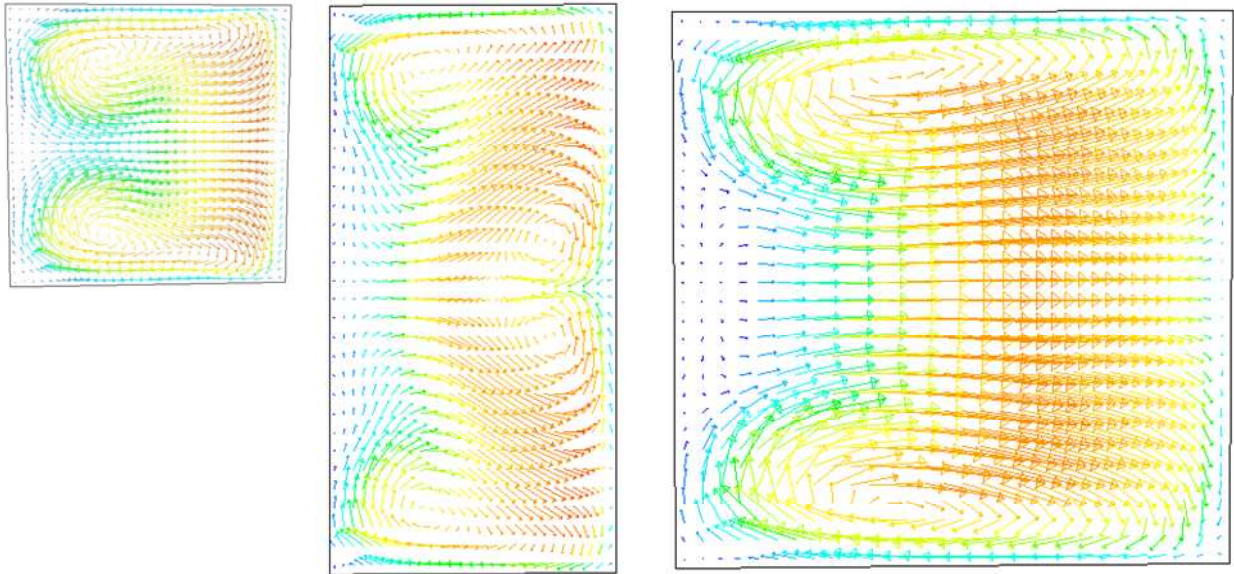


Figure VI.22 : Profil de vitesse en sortie de coude dans les maquettes 'e', 'f' et 'g' (de gauche à droite – $Re=400$).

Ces résultats numériques nous permettent d'envisager une explication concernant le niveau d'échange thermique de la maquette 'f' par rapport à ses homologues de section carrée. On s'aperçoit sur la figure VI.22, qu'en plus des recirculations secondaires au niveau des parois, une paire de vortex apparaît au centre de l'écoulement dans la section rectangulaire. C'est sans doute grâce à ces recirculations supplémentaires que l'échange dans la maquette 'f' est plus efficace que dans les maquettes 'e' et 'g', d'où la courbe caractéristique $Nu=f(Re)$ située au dessus de celle des géométries à section carrée sur la figure VI.21.

Le deuxième résultat intéressant mis en évidence par le graphe VI.21 concerne l'influence du diamètre hydraulique. En s'affranchissant de ce paramètre, les tendances sont inversées par rapport aux graphes VI.17 et VI.18. A iso-Reynolds, les performances thermiques de la maquette 'g' ($d_h=4$ mm) sont en effet supérieures à celles de la maquette 'e' ($d_h=2$ mm). Le diamètre hydraulique de cette dernière est plus petit que celui de la géométrie 'g' et inversement pour le rayon de courbure 'interne' ($R_{ci}=3$ mm dans la maquette 'e' et $R_{ci}=2$ mm dans la 'g'). A iso-Reynolds, l'effet de ces deux paramètres s'additionne lorsque l'on calcule le

nombre de Dean, $De = Re \cdot \sqrt{\frac{d_h}{R_c}}$. Ainsi, le nombre de Dean dans la géométrie 'g' est supérieur

à celui caractéristique de la géométrie 'e'. Comme pour les autres caractérisations, il est donc intéressant de tracer l'évolution du nombre de Nusselt en fonction du nombre de Dean 'interne'. C'est ce que représente la figure VI.23 :

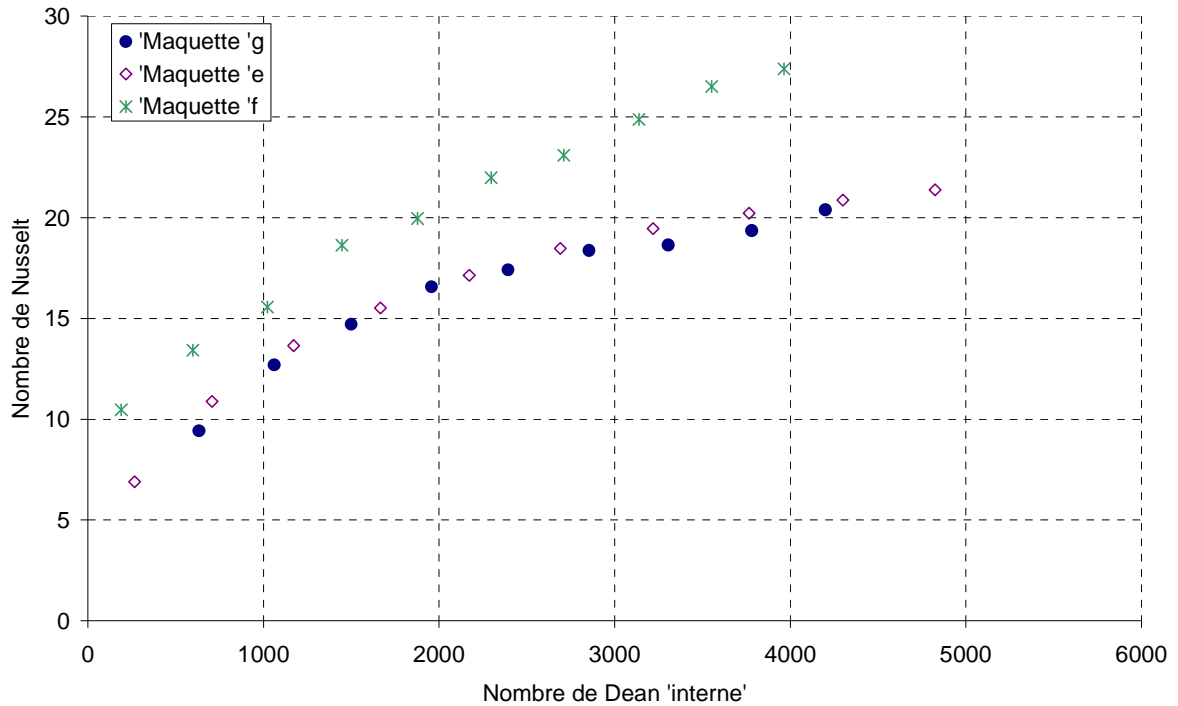


Figure VI.23 : Nombre de Nusselt en fonction du nombre de Dean 'interne'

A iso-Reynolds, le nombre de Dean de la maquette 'f' ($d_h=2,67$ mm) est plus important que celui de la maquette 'e' ($d_h=2$ mm), c'est l'effet du diamètre hydraulique. De plus, les recirculations étant plus nombreuses dans la section rectangulaire, l'homogénéisation radiale en température est meilleure et le nombre de Nusselt est alors supérieur à celui des géométries à section carrée.

Par ailleurs, lorsque le facteur de forme est conservé et égal à 1, les courbes caractéristiques du Nusselt en fonction du nombre de Dean sont parfaitement superposées pour les deux tailles de canal étudiées ($d_h=2$ et 4 mm). Contrairement aux corrélations en tube droit qui relie le nombre de Nusselt au Reynolds, le critère thermique est paramétré par le nombre de Dean dès que les canaux sont ondulés. Ce résultat remarquable montre que, tant que le Dean est conservé, le changement de taille de 2 à 4 mm, pour un facteur de forme constant ($b/a=1$), n'impacte pas les performances thermiques.

Il est alors possible d'établir la loi corrélant les nombres de Nusselt expérimentaux au nombre de Dean 'interne'. L'expression du Nusselt s'écrit généralement :

$$Nu = a \cdot Re^b \cdot Pr^c \tag{VI-5}$$

L'exposant du nombre de Prandtl est habituellement fixé à 0,33. En traçant donc $Nu/Pr^{0,33}$ en fonction du Dean (figure VI.24), on obtient par analogie, à partir de la courbe VI.18 :

$$\frac{Nu}{Pr^{0,33}} = 0,45 \cdot De_i^{0,43} \tag{VI-6}$$

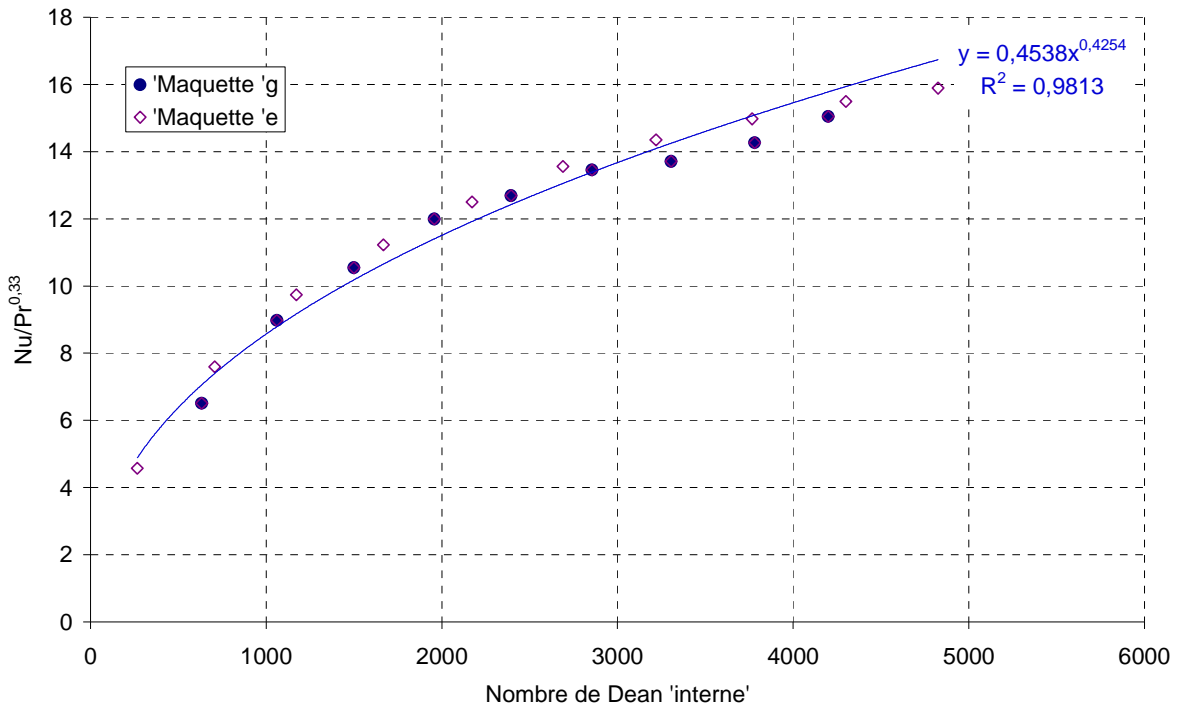


Figure VI.24 : $Nu/Pr^{0,33}$ en fonction du nombre de Dean 'interne' pour les maquettes 'e' et 'g'.

La corrélation (VI-6) permet de représenter les résultats obtenus en termes de coefficient de transfert de chaleur global (figure VI.17). Les points expérimentaux ont montré que ce dernier évoluait de façon inversement proportionnelle au diamètre hydraulique. Le coefficient U s'écrit :

$$\frac{1}{U \cdot A} \propto \frac{1}{h_p \cdot A_p} \quad (VI-7)$$

Avec

$$h_p = \frac{Nu \cdot \lambda}{d_h} \text{ et } Nu = a \cdot De^b \cdot Pr^c$$

Si l'on compare deux géométries à iso-vitesse, le nombre de Nusselt varie donc comme :

$$Nu \propto \left(Re \cdot \sqrt{\frac{d_h}{R_c}} \right)^b \text{ soit } Nu \propto d_h^{3b/2} \quad (VI-8)$$

avec $b=0,43$,

$$U \propto \frac{1}{d_h^{1-3b/2}} \text{ soit } U \propto \frac{1}{d_h^{0,36}}$$

Donc lorsque le diamètre hydraulique diminue, le coefficient de transfert de chaleur global a bien tendance à augmenter. C'est ce que l'on observait sur la figure VI.17 pour laquelle, la pente entre les points correspondant à un diamètre hydraulique de 2 mm et de 4 mm vaut en moyenne 0,33.

VI.2.4.3 Conclusion

Les performances thermiques, caractérisées expérimentalement, ont permis de déterminer les coefficients de transfert de chaleur globaux dans chaque maquette ainsi que les lois reliant le nombre de Nusselt au paramètre caractéristique de l'écoulement, le nombre de Dean dans notre cas.

Contrairement aux prédictions de la littérature en conduite rectiligne, la diminution du facteur de forme de 1 à 0,5 semble améliorer les performances thermiques dans les canaux ondulés d'au moins 20%. Lorsque la section de passage est rectangulaire, une seconde paire de boucles de recirculations apparaît, renforçant le processus d'homogénéisation radiale des températures par rapport à l'écoulement dans une section carrée. C'est ce phénomène qui serait à l'origine des meilleurs transferts dans la maquette 'f' par rapport aux maquettes 'e' et 'g'.

La comparaison des géométries dont le facteur de forme est égal à 1 (maquettes 'e' et 'g') est également intéressante. En effet, tant que le diamètre hydraulique intervient, les performances dans la maquette de plus petit diamètre hydraulique sont meilleures que dans la seconde : le rapport surface/volume est double et le coefficient de transfert de chaleur global est inversement proportionnel au diamètre hydraulique. En revanche, après avoir adimensionné les paramètres caractéristiques, la maquette 'g' ($d_h=4$ mm) s'avère être plus efficace à iso-Reynolds. C'est encore une fois l'effet des recirculations de Dean qui, pour un même Reynolds, sont plus intenses (i.e. nombre de Dean plus élevé) dans la maquette 'g' (augmentation du diamètre hydraulique et réduction du rayon de courbure). Ainsi, les courbes caractéristiques d'évolution du nombre de Nusselt en fonction du nombre de Dean 'interne' sont parfaitement superposées. Ce résultat signifie que le changement de taille (de 2 à 4 mm) d'un canal de section carrée ne semble pas impacter les performances thermiques tant que le nombre de Dean est conservé. Nous avons donc les premières briques pour envisager de prédire l'évolution des performances thermiques lors du processus d'extrapolation.

VI.2.5 SYNTHÈSE DES RESULTATS

La caractérisation expérimentale des écoulements dans les canaux structurés de tailles différentes a permis de comprendre les mécanismes régissant les performances thermo-hydrauliques. L'objectif est de prédire l'évolution de ces critères lors du processus d'extrapolation.

Les résultats expérimentaux constituent une première base de données pour des dimensions caractéristiques de 2 ; 2,67 et 4 mm et des tendances sont déjà apparues : certains critères de performances seront déterminants lors du changement de taille tandis que d'autres ne sont jamais limitants. C'est le cas des DTS et du mélange global. En effet, en régime laminaire (à iso-Reynolds ou iso-vitesse), le caractère piston est renforcé lorsque la taille des canaux augmente, avec un minimum de 1 bac par coude, permettant ainsi de prédire le nombre de bacs équivalents au canal développé. Les performances de mélange sont également améliorées lorsque la taille des canaux augmente avec une diminution des temps de mélange caractéristiques. Mais le point commun à ces caractérisations reste la similitude des critères

de performances en fonction du nombre de Dean 'interne', ce dernier étant calculé à partir du rayon de courbure de l'intérieur du coude. Ainsi, à iso-Reynolds, l'augmentation du diamètre hydraulique des canaux, qui induit une diminution du rayon de courbure 'interne', implique forcément des variations de Dean non négligeables entre les maquettes. Ce dernier gouverne les mécanismes thermo-hydrauliques et l'hydrodynamique des écoulements. Ainsi, le nombre de Nusselt et le coefficient de Darcy dépendent directement du nombre de Dean 'interne' et sont conservés lorsque la taille des canaux augmente, tant que le facteur de forme est conservé et égal à 1. Les lois corrélant ces deux critères au nombre de Dean permettent donc de faire les premiers pas vers la prédiction du comportement des écoulements lors du processus d'extrapolation. Le paragraphe suivant illustre les résultats expérimentaux avec une application numérique.

VI.3 INVARIANTS ET APPLICATION NUMERIQUE

Sachant que le temps de mélange et les DTS sont au pire conservés et au mieux améliorés lors du changement de taille, il est surtout intéressant de pouvoir prédire l'évolution des pertes de charge et du coefficient de transfert thermique au cours du processus d'extrapolation. Dans ce paragraphe, nous allons détailler une démarche utilisant les résultats obtenus précédemment et qui permette d'estimer l'évolution des performances lors d'un changement de taille du canal carré. Les indices 1 et 2 sont respectivement affectés à la maquette de taille réduite et à son homologue extrapolée.

La géométrie de référence, indiquée '1', correspond en fait à la maquette 'e' de diamètre hydraulique égal à 2 mm. Le débit F_1 est égal à $10 \text{ L}\cdot\text{h}^{-1}$ tandis que le débit F_2 est imposé par les objectifs de production ou le cahier des charges.

La première hypothèse consiste à considérer que pour que la chimie reste identique, le temps de séjour doit être conservé. Dans ce cas, les rapports F_2/F_1 et t_2/t_1 sont alors connus et imposent le volume total de fluide réactionnel :

$$\frac{V_2}{V_1} = \frac{F_2 \cdot t_2}{F_1 \cdot t_1} = \frac{F_2}{F_1} \quad (\text{VI-9})$$

Si l'on considère que l'on conserve des plaques identiques, les paramètres géométriques de la structure ondulée sont conservés et notamment la longueur développée totale, L . La vitesse et le diamètre hydraulique sont alors imposés puisque :

$$\frac{V_2}{V_1} = \frac{S_2 \cdot L_2}{S_1 \cdot L_1} = \left(\frac{d_{h2}}{d_{h1}} \right)^2 \cdot \frac{L_2}{L_1} \text{ d'où } \frac{d_{h2}}{d_{h1}} = \sqrt{\frac{V_2}{V_1}} \quad (\text{VI-10})$$

et

$$\frac{v_2}{v_1} = \frac{F_2/S_2}{F_1/S_1} \quad (\text{VI-11})$$

v et S étant respectivement la vitesse débitante ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) et la section de passage (m^2). A partir de là sont calculés l'aire d'échange, A ; le nombre de Reynolds, Re et le nombre de Dean 'interne', De . Ce dernier dépend du rayon de courbure interne qui varie selon le rayon de courbure initial de la fibre neutre, R_c et le diamètre hydraulique.

Dans notre cas la géométrie initiale est telle que $R_c=4$ mm à la fibre neutre et $d_{h1}=2$ mm, alors le rayon de courbure 'interne' dans la maquette extrapolée, R_{c2} vaut :

$$\frac{R_{c2}}{R_{c1}} = \frac{R_c - d_{h2}/2}{R_c - d_{h1}/2} \quad (\text{VI-12})$$

d_{h2} est calculé à partir de la relation (VI-10). On a alors :

$$\frac{Re_2}{Re_1} = \frac{v_2 \cdot d_{h2}}{v_1 \cdot d_{h1}} \quad (\text{VI-13})$$

et

$$\frac{De_2}{De_1} = \frac{Re_2}{Re_1} \cdot \left(\frac{d_{h2}/d_{h1}}{R_{c2}/R_{c1}} \right)^{0,5} \quad (\text{VI-14})$$

Les caractéristiques géométriques et les conditions d'écoulement étant fixées, il est maintenant possible de déterminer l'évolution des pertes de charge et du coefficient de transfert de chaleur côté 'procédé' à partir des corrélations établies dans les paragraphes précédents (VI-4) et (VI-6). Ainsi :

$$\frac{\Delta P_2}{\Delta P_1} = \frac{L_2}{L_1} \cdot \frac{d_{h1}}{d_{h2}} \cdot \left(\frac{v_2}{v_1} \right)^2 \cdot \left(\frac{De_2}{De_1} \right)^{-0,38} \quad (\text{VI-15})$$

et

$$\frac{h_{p2}}{h_{p1}} = \frac{d_{h1}}{d_{h2}} \cdot \left(\frac{De_2}{De_1} \right)^{0,43} \quad (\text{VI-16})$$

Les résultats de deux applications numériques sont présentés dans le tableau suivant. Le premier cas envisagé correspond aux géométries expérimentales, à savoir : $d_{h1}=2$ mm et $d_{h2}=4$ mm. Dans le second cas, il s'agit de multiplier le débit de production par 10, soit $F_1=10 \text{ L}\cdot\text{h}^{-1}$ et $F_2=100 \text{ L}\cdot\text{h}^{-1}$.

Dans le tableau, les valeurs suivies d'un astérisque * correspondent aux contraintes fixes (conservation du temps de séjour et de la longueur développée, facteur 2 sur le diamètre hydraulique et facteur 10 sur le débit).

		Cas n°1	Cas n°2
Temps de séjour	ts_2/ts_1	1*	1*
Débit volumique	F_2/F_1	4	10*
Longueur développée	L_2/L_1	1*	1*
Diamètre hydraulique	d_{h2}/d_{h1}	2*	3,16
Vitesse débitante	v_2/v_1	1	1
Section de passage	S_2/S_1	4	10
Aire d'échange	A_2/A_1	2	3
Volume de fluide	V_2/V_1	4	10
Rayon de courbure 'interne'	Rc_2/Rc_1	0,67	0,28
Nombre de Reynolds	Re_2/Re_1	2	3
Nombre de Dean 'interne'	De_2/De_1	3,46	5,62
Perte de charge	$\Delta P_2/\Delta P_1$	0,31	0,16
Facteur d'intensification	$(h_{p2} \cdot A_2/V_2)/(h_{p1} \cdot A_1/V_1)$	0,42	0,21
Productivité maximale	$(F_2 \cdot h_{p2} \cdot A_2/V_2)/(F_1 \cdot h_{p1} \cdot A_1/V_1)$	1,7	2,1
Puissance de pompage	$(F_2 \cdot \Delta P_2/V_2)/(F_1 \cdot \Delta P_1/V_1)$	0,31	0,16

Tableau VI.7 : Prédiction de l'évolution des critères d'écoulement et de performances lors du changement de taille

Lorsque l'on conserve le temps de séjour et donc la vitesse débitante, à cause de la diminution du rapport surface/volume quand la taille des canaux augmente, le facteur d'intensification $h_p \cdot A/V$ chute nécessairement. Cependant, si l'on ramène cette valeur au débit de production, on peut définir une productivité. En effet, la chaleur maximale qui peut être évacuée est équivalente à la chaleur maximale que pourra générer la réaction qui dépend, elle-même, des concentrations initiales en réactifs. On remarque alors que lorsque la taille des canaux augmente, cette pseudo-productivité croît. A contrario, les pertes de charge et les puissances de pompage diminuent et rendent donc intéressant le changement d'échelle.

Ainsi, si l'on extrapole la maquette 'e' ($d_h=2$ mm) vers la maquette 'g' ($d_h=4$ mm) en conservant le temps de séjour (cas n°1), le débit est multiplié par 4, les pertes de charge totales sont divisées par 3 et le facteur d'intensification thermique ($h_p \cdot A/V$) par 2,4. En multipliant ce dernier par le débit de production, la pseudo-productivité est multipliée par 1,7 lorsque l'on extrapole les canaux pour une puissance de pompage divisée par 3, rendant intéressante la maquette extrapolée.

Si maintenant l'on cherche à mettre en œuvre des débits industriels dans la maquette de même géométrie ($100 \text{ L} \cdot \text{h}^{-1}$, cas n°2), le diamètre hydraulique doit être multiplié par 3,16 pour conserver le temps de séjour et la vitesse débitante. Dans ce cas la perte de charge et la puissance de pompage sont divisées par 6 alors que le facteur d'intensification thermique n'est divisé que par 4,7 pour une productivité multipliée par 2.

En programmant, les équations (VI-9) à (VI-16), il est possible de prédire l'évolution des performances, quel que soit le critère que l'on souhaite conserver (vitesse débitante, longueur développée, nombre de Dean, ...). Il faut cependant veiller à respecter les contraintes

technologiques qui sont telles que le diamètre hydraulique ne peut pas être deux fois supérieur au rayon de courbure.

Cette première démarche d'extrapolation est basée sur les résultats expérimentaux dans les maquettes 'e' et 'g'. Cependant, pour s'assurer de la validité des prédictions, il serait intéressant de caractériser expérimentalement un canal structuré pour des débits de l'ordre de la centaine de $L \cdot h^{-1}$.

VI.4 SYNTHÈSE DU CHAPITRE

L'objectif des caractérisations expérimentales dans des canaux structurés de différentes tailles est de comprendre les mécanismes thermo-hydrauliques afin de pouvoir prédire leur évolution lors du processus d'extrapolation. Pour cela, des géométries dont les diamètres hydrauliques et les facteurs de forme diffèrent, ont été caractérisées expérimentalement. En régime laminaire, qui nous intéresse pour la conservation du temps de séjour notamment, les critères de DTS et de mélange sont respectés voire améliorés quel que soit le facteur de taille. Ainsi, le nombre de bacs est facilement prédictible puisqu'il est au minimum égal au nombre de coudes et permet de s'assurer du comportement piston de l'écoulement. Le temps de mélange, quant à lui, diminue lorsque la vitesse ou le nombre de Reynolds sont conservés et ne limite donc en rien le processus de changement de taille.

Le résultat marquant réside dans le fait que ces deux critères de performances, temps de mélange et nombre de bacs, sont conservés lorsque le nombre de Dean 'interne' est constant. C'est en fait ce paramètre, plus que le nombre de Reynolds, qui régit l'écoulement dans les canaux ondulés. Il en est de même pour les performances thermiques (nombre de Nusselt) et les pertes de charge (coefficient de Darcy) à condition de conserver le facteur de forme ($b/a=1$).

Ces résultats sont intéressants pour envisager une procédure d'extrapolation. En effet, les corrélations reliant les critères de performances au critère d'écoulement peuvent donc être établies et servir ensuite à prédire le comportement des écoulements dans des canaux de tailles différentes et dont les débits admissibles se rapprochent des contraintes industrielles. Les conditions sur le temps de mélange et les DTS étant toujours satisfaites en régime laminaire, les lois de comportement ne concernent donc que l'évolution du nombre de Nusselt et du coefficient de Darcy. Les corrélations établies à partir de l'étude des deux géométries de section carrée 2x2 et 4x4, sont rappelées ci-après :

$$\Lambda = 3,68 \cdot De_i^{-0,38}$$

et

$$\frac{Nu}{Pr^{0,33}} = 0,45 \cdot De_i^{0,43}$$

Les graphes VI.25 et VI.26 représentent les corrélations et les plages d'erreur associées à chacune d'entre elles.

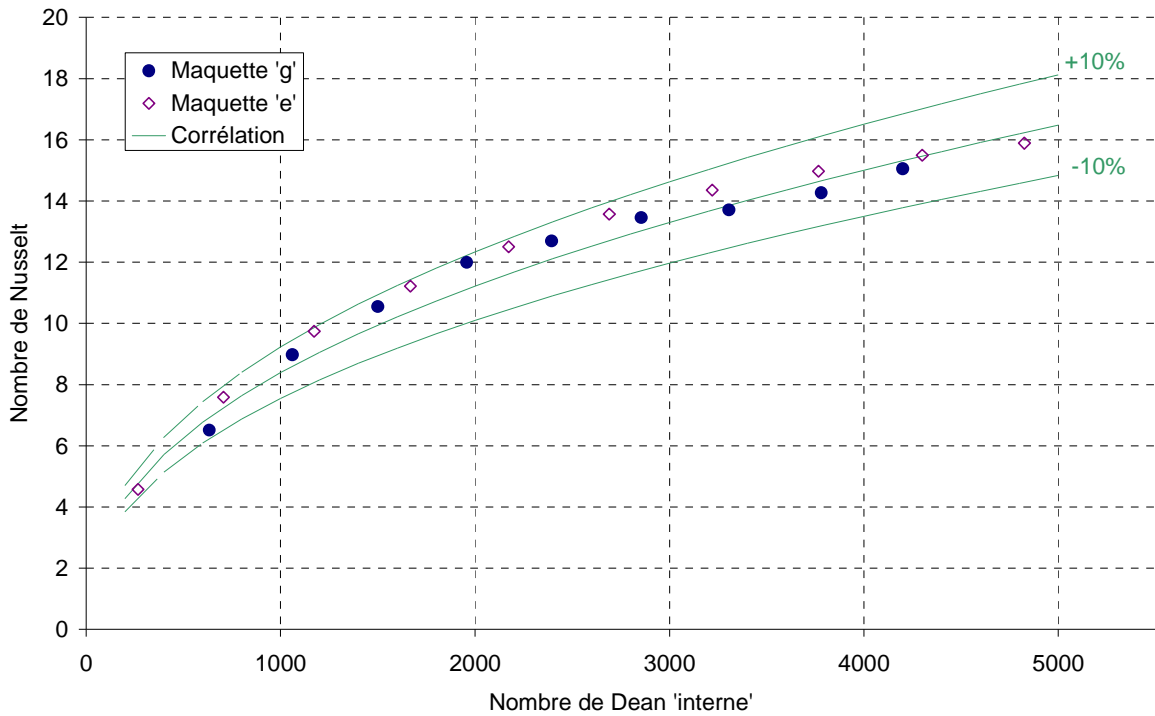


Figure VI.25 : Evolution du nombre de Nusselt en fonction du Dean 'interne'. Comparaison entre les points expérimentaux et la corrélation (VI-6) et marges d'erreur associées.

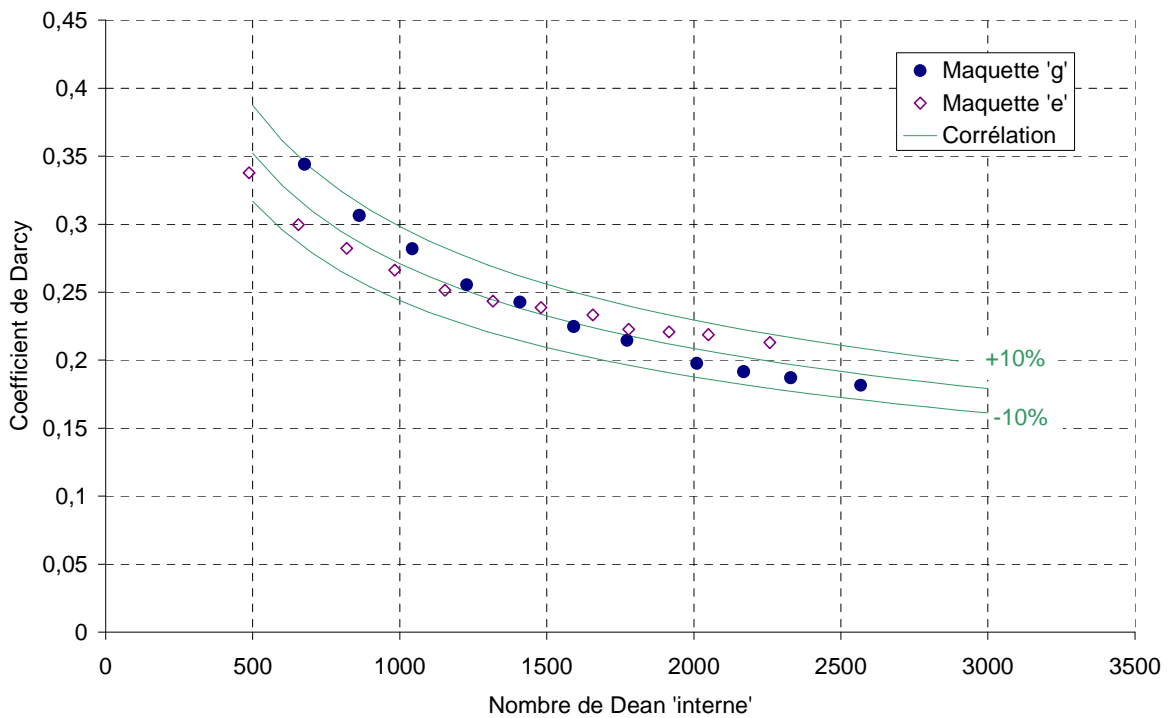


Figure VI.26 : Evolution du coefficient de Darcy avec le nombre de Dean 'interne'. Comparaison entre les points expérimentaux et la corrélation (VI-4) et marges d'erreur associées.

Les écarts aux corrélations sont autour de 10%, ce qui reste acceptable. Elles permettent donc de prédire convenablement l'évolution des performances lors du changement de taille des canaux structurés de 2 à 4 mm (section de passage carrée).

Au cours de cette première démarche d'extrapolation, chaque géométrie a été caractérisée à l'échelle 2 mm et leurs performances peuvent donc a priori être connues si l'on change d'échelle. C'est ce qu'ont illustré les deux exemples à partir de la géométrie 'e' en augmentant soit le diamètre hydraulique soit le débit de production. Pour valider ces résultats expérimentaux, il serait intéressant de caractériser une maquette à l'échelle $100 \text{ L}\cdot\text{h}^{-1}$ afin de s'assurer de la conservation des lois en nombre de Dean 'interne'. Par ailleurs, même si l'effet de l'augmentation du diamètre hydraulique en modifiant le facteur de forme a été étudié, l'approche reste encore trop fragmentaire et d'autres campagnes d'expérimentations devront être mises en œuvre pour dissocier l'impact du facteur de forme de celui dû au changement de taille, notamment sur les performances thermiques et les pertes de charge.

SYNTHESE GENERALE

En soulignant les limitations des réacteurs discontinus, notamment au niveau du transfert de chaleur, l'étude bibliographique a mis en évidence l'intérêt de la multifonctionnalité des appareils. Le couplage entre un réacteur et un échangeur de chaleur dans le même appareil a fait l'objet de nombreuses études et plusieurs technologies ont été développées. Cependant, la recherche d'efficacité peut conduire à des géométries trop complexes entraînant des surcoûts en termes de fabrication mais également d'exploitation (pertes de charge, colmatage,...) qui peuvent nuire à la compétitivité de ces appareils intensifiés. Aussi, l'une des voies envisagées pour y remédier consiste à structurer en deux dimensions, le chemin réactionnel. Celui-ci est ensuite gravé sur une plaque, elle-même placée en alternance avec une plaque de refroidissement. La structure globale de l'appareil est donc basée sur celle des échangeurs de chaleur à plaques.

Le comportement des écoulements dans ce type de structure est très peu étudié et la mise en œuvre de cette technologie dans un échangeur/réacteur global encore moins. La littérature est plutôt consacrée à l'effet d'un coude unique sur les pertes de charge et/ou le transfert thermique. Cependant, excepté le nombre de coudes par unité de longueur, les paramètres géométriques sont les mêmes que dans un canal ondulé. Quatre d'entre eux ont été identifiés comme décisifs : l'angle du coude, son rayon de courbure, le facteur de forme du canal (ratio entre hauteur et largeur du canal) et la longueur droite entre deux coudes. Ce seront donc les paramètres retenus pour cette étude. Les aspects de changement de taille, de mélange de deux fluides et de distribution du temps de séjour ne sont pas abordés dans la littérature. Ils représentent donc un enjeu important de la thèse.

La caractérisation d'un prototype en carbure de silicium et l'outil "élémentaire" de prédiction des performances, décrit dans le chapitre II, ont souligné le potentiel d'intensification lié à la structuration 2D des canaux. Afin d'envisager un développement industriel, les aspects d'optimisation de la géométrie et d'extrapolation doivent être considérés. Pour cela, deux projets sont adossés à la thèse. Le premier, financé par le programme énergie du CNRS et intitulé EXTRAPOLIS, se concentre sur l'extrapolation et la mise à l'échelle (production x 100 voire x 1000) tandis que le second, RAPIC, financé par l'ANR, consiste en l'optimisation du couple performances/prix pour répondre aux impératifs de coûts du marché et développer un appareil compétitif.

L'objectif des travaux de thèse était donc de caractériser et de comprendre les mécanismes de performances thermo-hydrauliques et le comportement des écoulements dans les canaux ondulés des échangeurs/réacteurs à plaques. Il s'agit de la première étape en vue de l'optimisation de leur géométrie et de leur extrapolation. Les outils nécessaires aux caractérisations expérimentales ont été développés, ce sont des maquettes en plexiglas sur lesquelles sont gravés les canaux ondulés. Elles sont au nombre de 7, chacune

correspondant à une géométrie particulière. En parallèle et pour visualiser les écoulements, un outil de modélisation numérique a été réalisé à l'aide d'un code commercial (Fluent).

A partir de là, les travaux de thèse ont été organisés en trois étapes que sont :

- Les caractérisations expérimentales nécessaires à la compréhension des mécanismes de performance. Elles concernent la majeure partie de cette étude ;
- L'optimisation de la géométrie en fonction des critères de performance souhaités ;
- Les premiers pas vers une démarche d'extrapolation, i.e. la caractérisation des performances lors du changement de taille des canaux ondulés.

Les caractérisations expérimentales sont au nombre de 4. La connaissance des Distributions du Temps de Séjour (DTS) et des pertes de charge permet de comprendre le comportement de l'écoulement dans les canaux ondulés, tandis que les transferts de matière et de chaleur donnent une information sur leurs mécanismes de performances thermo-hydrauliques.

Les DTS dans chaque géométrie sont modélisées par une cascade de N bacs parfaitement agités. Quels que soient la structure du canal et le régime d'écoulement ($200 \leq Re \leq 2100$), le nombre de bacs est supérieur à 50. L'écoulement peut donc être considéré comme un écoulement piston. Ce résultat est d'autant plus vrai quand la section de passage s'élanche (du carré vers le rectangle) et quand le ratio entre longueur courbe et longueur droite augmente. C'est le cas lorsque l'angle des coudes ou le rayon de courbure augmentent. Le résultat marquant concerne surtout le fait que pour chaque géométrie, **un coude est l'équivalent d'un bac**. Il n'est donc pas nécessaire, du seul point de vue de la DTS, de travailler avec des géométries dont le nombre de coudes soit excessif.

Ce résultat est intéressant vis-à-vis des pertes de charge puisque celles-ci augmentent logiquement (jusqu'à un facteur de 1,5) lorsque le nombre de coudes par unité de longueur augmente, ce qui est le cas lorsque la longueur droite entre chaque coude diminue de 20,28 mm à 6,94 mm. La contribution des coudes sur la perte de charge totale a été évaluée. Pour un motif donné (coude + longueur droite), trois contributions sont en fait à prendre en compte : celle de la longueur droite, celle de la longueur courbe et celle de la longueur de persistance. Les deux premières sont facilement évaluables à partir des données de la littérature, la troisième correspond à la perte de charge due à la propagation des vortex de recirculation générés dans le coude et visualisés numériquement. Ainsi plus la longueur droite en aval du coude est importante, plus la part due à la persistance croît jusqu'à une longueur limite correspondant à la dissipation des vortex. Les résultats expérimentaux ont montré que lorsque la longueur droite en aval des coudes augmentait, la perte de charge par motif augmentait pour une perte de charge totale qui s'avérait, au final, moindre. Par ailleurs, et de la même manière que pour les DTS, la perte de charge croît d'un facteur 1,5 lorsque le ratio entre longueur courbe et longueur droite augmente, i.e. lorsque l'angle ou le rayon de courbure augmentent.

Finalement, l'écoulement est toujours piston et le nombre de bacs facilement prévisible à partir du nombre de coudes. La contrainte sur l'hydrodynamique de l'écoulement reposera donc sur les pertes de charge maximales admissibles.

La deuxième partie des caractérisations expérimentales concerne le mélange, qui comprend le mélange global et le micromélange, et les performances thermiques. Les temps de mélange sont tous identiques quelle que soit la géométrie dès lors que le régime d'écoulement est au-delà de $Re=500$. En dessous de ce seuil, le seul paramètre géométrique ayant une influence est le rayon de courbure. Lorsqu'il augmente, les temps de mélange sont multipliés par 2 ou 3. Cependant, si l'on considère le nombre adimensionnel caractérisant l'écoulement comme étant le nombre de Dean et non plus le nombre de Reynolds, alors les temps de mélange de chaque géométrie sont tous parfaitement similaires ($100 \leq De \leq 2000$). Le nombre de Dean est donc le paramètre pertinent qui « pilote » le mélange.

Les expériences de micromélange, quant à elles, ne constituent qu'une première approche et ont été réalisées dans l'optique de comparer chaque géométrie. Les résultats expérimentaux soulignent l'influence de l'injection et notamment de sa position par rapport au canal principal qui semble être le paramètre clé. En la déplaçant d'une longueur droite vers un coude, l'indice de ségrégation peut être jusqu'à divisé par deux, signifiant que le micromélange est plus efficace.

Finalement, le mélange ne constitue en rien une contrainte quant au choix de la géométrie optimale. Il faudra simplement veiller au rayon de courbure dans le cas d'application mettant en œuvre des fluides très visqueux, par exemple, pour lesquels le régime d'écoulement peut se trouver en dessous du **nombre de Dean critique** (150 à 250).

Les transferts de chaleur, quant à eux, sont beaucoup plus sensibles à la structure géométrique des canaux. Même si l'angle des coudes, qui contrairement aux DTS et au micromélange, n'a aucune influence sur les performances thermiques, ce n'est pas le cas du rayon de courbure ni des longueurs droites. Lorsque la distance entre deux coudes augmente de 6,94 mm à 20,28 mm, le transfert de chaleur est moins efficace (diminution pouvant aller jusqu'à un facteur 2). C'est en fait l'effet du nombre de coudes par unité de longueur qui chute de 106 à 44 coudes/mètre. Cependant, la baisse des performances (facteur 2) n'est pas proportionnelle à celle du nombre de coudes par mètre (facteur 2,5), les longueurs droites doivent donc contribuer elles aussi à l'échange thermique. Il s'agit toujours du phénomène de persistance des boucles de recirculation.

L'influence du rayon de courbure sur les performances thermiques est également notable. Lorsqu'il augmente de 1,5 mm à 4 mm, le transfert de chaleur décroît de 30% si l'on conserve le nombre de Reynolds. Cependant, si l'on caractérise le régime d'écoulement par le nombre de Dean, on s'aperçoit alors que le rayon de courbure n'a plus aucune influence sur le nombre de Nusselt. Comme pour le mélange, le paramètre pertinent pour caractériser les performances thermiques est donc le nombre de Dean. Aussi, nous avons établi nos propres corrélations reliant le nombre de Nusselt au nombre de Dean.

Le tableau suivant récapitule l'influence de chaque paramètre géométrique (lorsqu'il varie de x à y) sur chaque critère de performance : le nombre de bacs (N_{bacs}), les pertes de charge (ΔP), le temps de mélange (t_m), l'indice de ségrégation (X_s) et le nombre de Nusselt. Les flèches \uparrow et \downarrow signifient respectivement que la valeur numérique du critère monte ou descend. Les symboles (+) et (-) représentent l'effet positif ou négatif sur les performances.

	DTS	Pertes de charge		Micro-mélange	Mélange global	Thermique
	N_{bacs}/L	$\Delta P/L$ ($\text{bar}\cdot\text{m}^{-1}$)	$\Delta P/\text{coude}$ (bar)	X_s	t_m (s)	UA/V ($\text{W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$)
Rayon de courbure, R_c (de 1,5 à 4 mm)	↑ (+)	↑ (-)	↑ (-)	?	↑ (-)	↓ (-)
Longueur droite, L_d (de 6,94 à 20,28 mm)	↓ (-)	↓ (+)	↑ (-)	≈	≈	↓ (-)
Angle des coudes, θ (de 45 à 75°)	↑ (+)	↑ (-)	↑ (-)	↑ (-)	≈	≈

Evolution des critères de performance en fonction de chaque paramètre géométrique.

La seconde étape de ces travaux consiste à déterminer la géométrie optimale en fonction des contraintes d'utilisation.

Les résultats expérimentaux ont montré que, quelle que soit la géométrie, les critères de performance, que sont le nombre de bacs, le temps de mélange et le nombre de Nusselt, s'amélioreraient lorsque le nombre de Reynolds ou le nombre de Dean augmentait. Ce gain se fait évidemment au détriment des pertes de charge qui croissent elles aussi. Pour sélectionner la géométrie optimale, il est donc pertinent d'étudier l'évolution des critères de performances en fonction de la puissance de pompage.

Les DTS et le mélange ne sont pas des phénomènes limitants, excepté à très faible nombre de Dean (<250). Le critère le plus déterminant est en fait celui qui représente l'évolution des performances thermiques en fonction de la puissance de pompage. C'est la maquette 'c' qui, pour un niveau d'échange donné, est la moins coûteuse. La maquette 'b' est en effet trop gourmande en pertes de charge pour des performances thermiques similaires et la diminution du nombre de coudes par unité de longueur dans les maquettes 'd' et 'e', bien que favorable aux pertes de charge, ne permet pas d'atteindre les niveaux d'échange des autres géométries. Cependant, même si la maquette 'c' semble être la plus efficace pour une puissance de pompage donnée, il faut veiller à respecter la perte de charge maximale admissible et/ou le débit minimal de fonctionnement qui peuvent éventuellement écarter la maquette 'c' au profit des maquettes 'd' et 'e'.

En conclusion, selon le critère d'optimisation, ce ne seront pas les mêmes géométries qui conviendront, le tableau suivant illustre ces propos en classant chaque maquette selon le critère considéré.

	Maq. 'b'	Maq. 'c'	Maq. 'd'	Maq. 'e'
Puissance de pompage minimale (pour un transfert thermique donné)	2°	1°	3°	4°
Perte de charge minimale (pour un transfert thermique donné)	4°	3°	1°	1°
Transfert de chaleur maximal (pour une perte de charge donnée)	1°	2°	3°	3°
Compacité maximale (pour un transfert thermique donné)	1°	2°	3°	4°

Classement des maquettes selon quelques exemples de critère d'optimisation.

Enfin, la dernière étape de ces travaux concerne les premiers pas vers l'extrapolation. L'objectif est de pouvoir prédire l'évolution des performances lors du processus de changement de taille. Pour cela, des géométries dont les diamètres hydrauliques et les

facteurs de forme différent, ont été caractérisées expérimentalement. La fabrication des maquettes a révélé une limitation d'ordre technologique lorsque la taille des canaux augmente : le rayon de courbure à la fibre neutre est conservé mais ce n'est pas le cas à l'intérieur et à l'extérieur des coudes. Ce paramètre supplémentaire nous a conduit à définir un **nombre de Dean 'interne'** basé sur le rayon de courbure à l'intérieur du coude. A partir de là, l'exploitation des caractérisations expérimentales a révélé des résultats remarquables. En effet, à iso-Dean 'interne', quel que soit le critère concerné (nombre de Nusselt, coefficient de Darcy, nombre de bacs ou temps de mélange) et pour un facteur de forme égal à 1, les **performances sont conservées** lorsque le diamètre hydraulique du canal augmente. Ces résultats sont intéressants pour envisager une procédure d'extrapolation. Les corrélations reliant les critères de performances au critère d'écoulement (nombre de Dean) peuvent donc être établies et servir ensuite à prédire le comportement des écoulements dans des canaux de tailles différentes et dont les débits admissibles se rapprochent des contraintes industrielles.

Ce travail qui aboutit à une meilleure compréhension des écoulements et des performances thermo-hydrauliques dans les canaux structurés, ouvre également de nombreuses perspectives. Il nous semble intéressant de privilégier deux axes : la caractérisation des performances dans un champ d'application plus large et la poursuite de la démarche d'extrapolation vers les débits industriels.

Même si par ordre chronologique, il est nécessaire de caractériser dans un premier temps les géométries dans le cas des écoulements liquides monophasiques ; les écoulements diphasiques liquide/liquide, solide/liquide ou gaz/liquide représentent des enjeux considérables et de nombreuses applications industrielles. Des premiers tests concernant l'étude du comportement d'une émulsion liquide/liquide dans les maquettes et la mise en œuvre d'une réaction d'encapsulation par polymérisation interfaciale ont été réalisés. Les résultats sont encourageants mais l'étude se doit d'être approfondie afin de caractériser exactement ce type d'écoulement. C'est dans cette optique que deux sujets de post-doctorats ont démarré au sein du groupe 'intensification des procédés' du LGC. L'un porte sur la caractérisation des écoulements liquide/liquide et la mise en œuvre d'une réaction exothermique (la nitration du toluène) dans l'échangeur/réacteur pilote en carbure de silicium. Le second concerne la cartographie et le comportement des écoulements gaz/liquide (transfert de matière notamment) dans les géométries proposées au cours de la thèse. Le champ d'applications de ces technologies concerne également la mise en œuvre de synthèses chimiques, de préférence exo- ou endo-thermiques. Aussi, il est prévu de donner une suite au projet de l'ANR, RAPIC. Il s'agira de l'étude du comportement et des performances de l'appareil global lors de la mise en œuvre de réactions dangereuses.

Le deuxième axe à privilégier se rapporte à la poursuite de la démarche d'extrapolation. Les résultats des travaux de thèse à ce sujet sont prometteurs mais ne concernent le changement de taille qu'à l'échelle du laboratoire ($1-15 \text{ L}\cdot\text{h}^{-1}$). Pour conclure cette étude, il est donc nécessaire d'élargir la gamme de débit jusqu'à 100 voire $1000 \text{ L}\cdot\text{h}^{-1}$ et de concevoir les pilotes adéquats sachant que le diamètre hydraulique sera alors fixé par la gamme d'invariants proposés dans le chapitre VI. Tout en gardant à l'esprit le couple performance/coût qui ne doit pas nuire à la compétitivité de l'appareil, les travaux d'extrapolation sont incontournables pour l'industrialisation de cette technologie.

BIBLIOGRAPHIE

- ABBANA BENANI M. « Apport des mousses métalliques en réacteur continu intensifié », Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse, Toulouse, 2008.
- ANXIONNAZ Z., ELGUE S., CABASSUD M., GOURDON C. Enhanced heat transfer through a silicon carbide heat exchanger reactor: how process intensification improve reaction control, *in progress*, 2009b.
- ANXIONNAZ Z., CABASSUD M., GOURDON C., TOCHON P. Transposition of an exothermic reaction from a batch reactor to an intensified one, *Heat Transfer Engineering, in press*, 2009a.
- ANXIONNAZ Z., CABASSUD M., GOURDON C., TOCHON P. Heat exchanger/reactors (HEX Reactors) : concepts, technologies : state-of-the-art, *Chemical Engineering and Processing, 47: 2029-2050*, 2008.
- AUBIN J., PRAT L., XUEREB C., GOURDON C. Effect of microchannel aspect ratio on residence time distributions and the axial dispersion coefficient, *Chemical Engineering and Processing, 48: 554-559*, 2009.
- BECHT S., FRANKE R., GEISSELMAN A., HAHN H. An industrial view of process intensification, *Chemical Engineering and Processing, 48(1)*, 329-332, 2009.
- BEEK J., MILLER R.S. Turbulent transport in chemical reactors, *Chemical Engineering Progress Symposium Series, 25: 23-28*, 1959.
- BENAISSA W, GABAS N, CABASSUD M, CARSON D, ELGUE S, DEMISSY M. Evaluation of an intensified continuous heat-exchanger reactor for inherently safer characteristics, *Journal of Loss Prevention in the process Industries, 21: 528-536*, 2008.
- BISWAS G, DEB P, BISWAS S. Generation of longitudinal streamwise vortices – A device for improving heat exchanger device, *Journal of Heat Transfer, 116: 588-597*, 1994.
- BOOMSMA K, POULIKAKOS D, ZWICK F, Metal foams as compact high performance heat exchangers, *Mechanics of Materials, 35: 1161-1176*, 2003.
- BOUAIFI M, MORTENSEN M, ANDERSSON R, ORCIUCH W, ANDERSSON B, CHOPARD F, NOREN T. Experimental and numerical investigations of a jet mixing in a multifunctional channel reactor, *Chemical Engineering Research and Design, 82(A2): 274-283*, 2004.
- BRANDNER J.J., BOHN L., HENNING T., SCHYGULLA U., SCHUBERT K. Microstructure heat exchanger applications in laboratory and industry, *Heat Transfer Engineering, 28(8-9): 761-771*, 2007.
- BRECHTELSBAUER C., RICARD F. Reaction engineering evaluation and utilization of static mixer technology for the synthesis of pharmaceuticals, *Organic Process Research & Development, 5(6): 646-651*, (2001).
- CARRIERE P. Echangeurs multifonctionnels – Scale-up, *Rapport interne, Projet EXTRAPOLIS*, (2008).
- CHANDRATILLEKE T.T., NURSUBYAKTO, Numerical prediction of secondary flow and convective heat transfer in externally heated curved rectangular ducts, *International Journal of thermal Sciences, 42: 187-198*, 2003.
- CHEN H, YU H, TANG Y, PAN M, PENG F, WANG H, YANG J, Assessment and optimization of the mass-transfer limitation in the metal foam methanol microreformer, *Applied Catalysis A: General, 337: 155-162*, 2008.

CHENG K.C., AKIYAMA M. Laminar forced convection heat transfer in curved rectangular channels, *International Journal of Heat & Mass Transfer*, 13: 471-490, 1970.

COMINI G., NONINO C., SAVINO S. Effect of space ratio and corrugation angle on convection enhancement in wavy channels, *International Journal of Numerical Methods for Heat & Fluid Flow*, 13(4): 500-519, 2003.

COMMENGE J.M., FALK L., CORRIOU J.P., MATLOSZ M. Analysis of microstructured reactor characteristics for process miniaturization and intensification, *Chemical Engineering & Technology*, 28(4): 446-458, 2005.

COUDERC J.P., GOURDON C., LINE A. *Phénomènes de transfert en génie des procédés*, éd. Tec&Doc, Lavoisier, Paris, France, 2008.

CROSS W.T., RAMSHAW C. Process intensification – laminar flow heat transfer, *Chemical Engineering Research & Design*, 64(4): 293-301, 1986.

DAVID R., XUEREB C., « Principes du mélange » dans *Agitation et mélange* éd. Dunod, Paris, France, pp.79, 2006.

DEAN W.R. Fluid motion in a curved channel, *Proceedings of the Royal Society of London Series A*; 121: 402-420, 1928.

DHIMAN S.K., VERMA V., RAO D.P., RAO M.S., Process intensification in a trickle-bed reactor: experimental studies, *AIChE Journal*, 51(12): 3186-3192, 2005.

DUDFIELD C.D., CHEN R., ADCOCK P.R. A carbon monoxide PROX reactor for PEM fuel cell automotive application, *International Journal of Hydrogen Energy*, 26: 763-775, 2001.

ELGUE S., CHOPARD F., CABASSUD M., COGNET P., PRAT L., GOURDON C. Optimisation d'une réaction chimique dans un réacteur ouvert du type à plaques, *French patent, FR 0500424*, 2006.

ELGUE S., JOLIVET C., GOURDON C., RAMDANI K., CABASSUD M. Study of intensification of hydrosilylation process according to a theoretical and experimental methodology, *18th International Congress of chemical and process engineering, Praha, Czech republic, August 24-28, 2008*.

ELGUE S., DEVATINE A., PRAT L., COGNET P., CABASSUD M., GOURDON C., CHOPARD F. Dynamic simulation of a novel intensified reactor, *14th European Symposium on Computer Aided Process Engineering, Lisbon, Portugal, May 16-19, 2004*.

ERPI, European Roadmap for Process Intensification, Creative Energy – Energy Transition, www.creative-energy.org, September 02, 2008.

EUSTICE J. Experiments of streamline motions in curved pipes, *Proceedings of the Royal Society of London Series A*; 85(1): 19:31, 1911.

FALK L., « Réacteurs chimiques » dans *Agitation et mélange* éd. Dunod, Paris, France, pp.133, 2006.

FELLOUAH H., CASTELAIN C., OULD EL MOCTAR A., PEERHOSSAINI H. A criterion for detection of the onset of Dean instability in Newtonian fluids, *European Journal of Mechanics B/Fluids*, 25: 505-531, 2006.

FERROUILLAT S., TOCHON P., PEERHOSSAINI H. Mixromixing enhancement by turbulence: application to multifunctional heat exchangers, *Chemical Engineering and Processing*, 45: 633-640, 2006a.

FERROUILLAT S., TOCHON P., DELLA VALLE D., PEERHOSSAINI H. Open loop thermal control of exothermal chemical reactions in multifunctional heat exchangers, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 49: 2479-2490, 2006b.

FERROUILLAT S., TOCHON P., GARNIER C, PEERHOSSAINI H. Intensification of heat transfer and mixing in multifunctional heat exchangers by artificially generated streamwise vorticity, *Applied Thermal Engineering*, 26(16): 1820-1829, 2006c.

FERROUILLAT S. « Etude du micromélange pour la caractérisation des performances d'échangeurs-réacteurs compacts multifonctionnels », Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique de l'Université de Nantes, Grenoble, 2004.

FIEBIG M. Vortices, generators and heat transfer, *Chemical Engineering Research & Design*, 76(A2): 108-123, 1998.

FOURNIER M.C., FALK L., VILLERMAUX J. A new parallel competing reaction system for assessing micromixing efficiency – experimental approach, *Chemical Engineering Science*, 51(22) : 5053-5064, 1996.

GIANI L, GROPPI G, TRONCONI E, Mass transfer characterization of metallic foams as supports for structured catalysts, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 44: 4993-5002, 2005.

GUICHARDON P., FALK L. Characterisation of micromixing efficiency by the iodide-iodate reaction system. Part I: experimental procedure, *Chemical Engineering Science*, 55: 4233-4243, 2000.

HAUGWITZ S, HAGANDER P, NOREN T. Modeling and control of a novel heat exchange reactor, the open plate reactor, *Control Engineering Practice*, 15(7): 779-792, 2007.

HENDERSHOT D.C. Process minimization: making plants safer, *Chemical Engineering progress*, 96(1): 35-40, 2000.

HESEL V., LÖWE H. Microchemical engineering: components, plant concepts, user acceptance – Part I, *Chemical Engineering & Technology*, 26(1):13-24, 2003a.

HESEL V., LÖWE H. Microchemical engineering: components, plant concepts, user acceptance – Part II, *Chemical Engineering & Technology*, 26(4): 391-408, 2003b.

HESEL V., LÖWE H. Microchemical engineering: components, plant concepts, user acceptance – Part III, *Chemical Engineering & Technology*, 26(5): 531-544, 2003c.

HESEL V., ANGELI P., GAVRIILIDIS A., LÖWE H. Gas-liquid and gas-liquid-solid microstructured reactors: contacting principles and applications, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 44: 9750-9769, 2005.

IDEL'CIK I.E. *Mémento des pertes de charges*, ed. Eyrolles EDF, pp 196, 1986.

ISMAGILOV Z.R, PUSHKAREV V.V, PODYACHEVA O.Y, KORYABKINA N.A, VERINGA H, A catalytic heat-exchanging tubular reactor for combining of high temperature exothermic and endothermic reactions, *Chemical Engineering Journal*, 82: 355-360, 2001.

JACHUCK R. Process intensification for responsive processing, *Trans IChemE*, 80(A): 223-238, 2002.

JACOBI A.M, SHAH R.K. Heat transfer surface enhancement through the use of longitudinal vortices: a review of recent progress, *Experimental Thermal and Fluid Science*, 11: 295-309, 1995.

JÄHNISCH K., HESSEL V., LÖWE H., BAERNS M. Chemistry in microstructured reactors, *Angewandte Chemie International edition*, 43(4): 406-446, 2004.

JIANG F., DRESE K.S., HARDT S., KÜPPER M., SCHÖNFELD F. Helical flows and chaotic mixing in curved micro channels, *AIChE Journal*, 50(9): 2297-2305, 2004.

JENSEN K.F. Microreaction engineering – is small better? *Chemical Engineering Science*, 56: 293-303, 2001.

JOSEPH B., SMITH E.P., ADLER R.J., Numerical treatment of laminar flow in helically coiled tubes of square cross section, *AIChE Journal*, 21 (5): 965-974, 1975.

KASHID M.N., KIWI-MINSKER L. Microstructured reactors for multiphase reactions: state-of-the-art, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, DOI 10.1021/ie8017912, 2009.

LEMENAND T, DUPONT P, DELLA VALLE D, PEERHOSSAINI H. Turbulent mixing of two immiscible fluids, *Journal of Fluids Engineering*, 127(6): 1132-1139, 2005.

LEVENSPIEL O. *Chemical reaction engineering*, 3rd ed. John Wiley & Sons, New York, pp.90-119, 1999.

LIGRANI P.M., NIVER R.D. Flow visualization of dean vortices in a curved channel with 40 to 1 aspect ratio, *Physics of Fluids*, 31 (12): 3605-3617, 1988.

LO S.N., CHOLETTE A. Experimental study on the optimum performance of an adiabatic MT reactor, *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 50: 71-80, 1972.

LOMEL S., FALK L., COMMENGE J.M., HOUZELOT J.L., RAMDANI K. The microreactor: a systematic and efficient tool for the transition from batch to continuous process?, *Chemical Engineering Research and Design*, 84(A5): 363-369, 2006.

LÖWE H., EHRFELD W. State-of-the-art in microreaction technology: concepts, manufacturing and applications, *Electrochimica Acta*, 44: 3679-3689, 1999.

MANGLIK R.M., ZHANG J., MULEY A. Low Reynolds number forced convection in three-dimensional wavy-plate-fins compact channels: fin density effects, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 48: 1439-1449, 2005.

MANGLIK R.M., BERGLES A.E. Heat transfer and pressure drop correlations for twisted-tape inserts in isothermal tubes: part II – Transition and turbulent flows, *Journal of Heat Transfer – Transactions of the ASME*, 115: 890-896, 1993.

METWALLY H.M., MANGLIK R.M. Enhanced heat transfer due to curvature-induced lateral vortices in laminar flows in sinusoidal corrugated-plate channels, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 47: 2283-2292, 2004.

MIDOUX N. *Mécanique et rhéologie des fluides en génie chimique*, éd. Tec&Doc, Lavoisier, Paris, France, 1993.

MOKRANI A, CASTELAIN C, PEERHOSSAINI H. Experimental study of the influence of the rows of vortex generators on turbulence structure in a tube, *Chemical Engineering and Processing*, 48: 659-671, 2009.

MORI Y., UCHIDA Y., UKON T. Forced convective heat transfer in a curved channel with a square cross section, *International Journal of heat and Mass Transfer*, 14: 1787-1805, 1971.

MURATA K., YAMAMOTO K., KAMEYAMA H. Performance of a tube-wall type reactor for transforming heat energy into chemical energy efficiently, *International Journal of Hydrogen Energy*, 21(3): 201-205, 1996.

NAPHON P, WONGWISES S. A review of flow and heat transfer characteristics in curved tubes, *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 10: 463-490, 2006.

NI X., JOHNSTONE J.C., SYMES K.C., GREY B.D., BENETT D.C. Suspension polymerization of acrylamide in an oscillatory baffled reactor: from drops to particle, *AIChE Journal*, 47(8): 1746-1757, 2001.

- NI X., MACKLEY M.R., HARVEY A.P., STONESTREET P., BAIRD M.H.I., RAMA RAO N.V. Mixing through oscillations and pulsations – A guide to achieving process enhancements in the chemical and process industries, *Trans IChemE*, 81(A): 373-383, 2003.
- OXLEY P., BRECHTELSBAUER C., RICARD F., LEWIS N., RAMSHAW C. Evaluation of spinning disk reactor technology for the manufacture of pharmaceuticals, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 39: 2175-2182, 2000.
- PAN L., WANG S. Modeling of a compact plate-fin reformer for methanol steam reforming in fuel cell systems, *Chemical Engineering Journal*, 108: 51-58, 2005.
- PAVEL B.I., MOHAMAD A.A. Experimental investigation of the potential of metallic porous inserts in enhancing forced convective heat transfer, *Journal of Heat Transfer*, 126(4): 540-545, 2004.
- PERRY R.H. *Perry's chemical engineers' handbook*, 7th ed., McGraw-Hill, USA, 1997.
- PHILLIPS C.H. LAUSCHKE G. PEERHOSSAINI H. Intensification of batch chemical processes by using integrated chemical reactor-heat exchangers, *Applied Thermal Engineering*, 17(8-10), 809-824, 1997.
- PHILLIPS C.H., SYMONDS K.T. Development of a novel integrated chemical reactor-heat exchanger, 3^d *International Conference on Process Intensification for the Chemical Industry*, Antwerp, Belgium, October 25-27, 1999.
- PRAT L, DEVATINE A, COGNET P, CABASSUD M, GOURDON C, ELGUE S, CHOPARD F. Performance evaluation of a novel concept « open plate reactor » applied to highly exothermic reactions, *Chemical Engineering & Technology*, 28(9) : 1028-1034, 2005.
- RAMSHAW C. Hige distillation - an example of process intensification, *The Chemical Engineer*, London, 389: 13-14, 1983.
- ROSAGUTI N.R., FLETCHER D.F., HAYNES B.S. Laminar flow and heat transfer in a periodic serpentine channel, *Chemical Engineering & technology*, 28 (3): 353-361, 2005.
- STITT E.H. Alternative multiphase reactors for fine chemicals – A world beyond stirred tanks? *Chemical Engineering Journal*, 90(1-2): 47-60, 2002.
- SCHÖNFELD F., HARDT S. Simulation of helical flows in microchannels, *AIChE Journal*, 50(4): 771-778, 2004.
- SCHUBERT K., BRANDNER J., FICHTNER M., LINDER G., SCHYGULLA U., WENKA A. Microstructure devices for applications in thermal and chemical process engineering, *Microscale Thermophysical Engineering*, 5: 17-39, 2001.
- SCHÜTZ J. Agitated thin-film reactors and tubular reactors with static mixers for a rapid exothermic multiple reaction, *Chemical Engineering Science*, 43(8), 1975-1980, 1988.
- SCHWEICH D. Génie de la réaction chimique, Tec. & Doc. L., Paris, 2001.
- SEGUR J.B., OBERSTAR H.E. Viscosity of glycerol and its aqueous solutions, *Industrial and Engineering Chemistry*, 43(9): 2117-2120, 1951.
- SHAH R.K., LONDON A.L. *Laminar flow forced convection in ducts*, ed. Academic Press, New York, chap. VII, pp. 200-204, 1978.
- SHAH R.K., MUELLER A.C., "Heat exchange" in *Ullmann's encyclopedia of industrial chemistry, unit operations II*, vol. B3, ed. Wiley-VCH, Weinheim, Germany, pp 11-15, 2002.
- SHELAT M.R. SHARRATT P.N. Use of compact heat exchanger as flexible reactor. *AIChE Annual meeting*, Austin, Texas, USA, November 7-12, 2004.

- SINGH J. Assessing semi-batch reaction hazards, *The Chemical Engineer*, 537: 21-25, 1993.
- STANKIEWICZ A. MOULIJN J.A. Process intensification, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 41, 1920-1924, 2002.
- STANKIEWICZ A. MOULIJN J.A. Process intensification: transforming chemical engineering, *Chemical Engineering Progress*, 96(1): 22-34, 2000.
- STOESSEL F. What is your thermal risk? *Chemical Engineering Progress*, 89(10): 68-75, 1993.
- STONESTREET P., DJEMAI A., MACKLEY M.R. The novel use of oscillatory flow reactors (OFRs) for process intensification of batch processes, *process intensification for the chemical industry*, BHR Group Publication, 38: 45-60, 1999.
- SUGIYAMA S., HAYASHI T., YAMAZAKI K. Flow characteristics in the curved rectangular channels, *Bulletin of the Japan Society of Mechanical Engineering*, 26 (216): 964-969, 1983.
- TIGGELBECK S, MITRA N.K, FIEBIG M. Comparison of wing-type vortex generators for heat transfer enhancement in channel flows, *Journal of Heat Transfer*, 116(4): 880-885, 1994.
- THAKUR R.K., VIAL C., NIGAM K.D.P., NAUMAN E.B., DJELVEH G. Static mixers in the process industries – A review, *Trans IChemE*, 81(A): 787-826, 2003.
- THERON F., ANXIONNAZ Z., CABASSUD M., LE SAUZE N., GOURDON C. Development of an intensified continuous process for microencapsulation by interfacial polymerization, *in progress*, 2009.
- THONON B., TOCHON P. "Compact multifunctional heat exchangers: a pathway to process intensification" in *Re-engineering the chemical processing plant*, ed. by A. Stankiewicz and J. Moulijn, Marcel dekker, New York, pp: 121-127, 2004.
- TRAMBOUZE P. Réacteurs chimiques – Technologie, *Techniques de l'ingénieur J4020*, 1993.
- TSOURIS C., PORCELLI J.V. Process intensification – Has its time finally come? *Chemical Engineering Progress*, 99(10): 50-55, (2003).
- TWIGG M.V, RICHARDSON J.T, Fundamentals and applications of structured ceramic foams catalysts, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 46: 4166-4177, 2007.
- VASTISTH S, KUMAR V, NIGAM K.D.P. A review on the potential applications of curved geometries in process industry, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 47: 3291-3337, 2008.
- VILLERMAUX J., FALK L., FOURNIER M.C., DETREZ C. Use of parallel competing reactions to characterize micromixing efficiency, *AIChE Symposium Series*, 286(88): 6-10, 1992.
- VILLERMAUX J. *Génie de la réaction chimique – Conception et fonctionnement des réacteurs*, éd. Tec&Doc, Lavoisier, Paris, France, Chap. 6, pp :160-165, 1982.
- ZHANG J., KUNDU J., MANGLIK R.J. Effect of fin waviness and spacing on the lateral vortex structure and laminar heat transfer in wavy-plate-fin cores, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 47: 1719-1730, 2004.

NOMENCLATURE

Nombres adimensionnels latins

De	$Re \cdot \sqrt{\frac{d_h}{R_c}}$	Nombre de Dean
f	$\frac{\tau_p}{\frac{1}{2} \rho \cdot v^2}$	Facteur de friction de Fanning
Nu	$\frac{h \cdot d_h}{\lambda}$	Nombre de Nusselt = $\frac{\text{transfert thermique par convection}}{\text{transfert thermique par conduction}}$
Pe	$\frac{L \cdot v}{D_A}$	Nombre de Péclet = $\frac{\text{transport convectif}}{\text{transport par diffusion axiale}}$
Pr	$\frac{C_p \cdot \mu}{\lambda}$	Nombre de Prandtl = $\frac{\text{transport conductif de qté de mouvement}}{\text{transport conductif de chaleur}}$
Re	$\frac{\rho \cdot v \cdot d_h}{\mu}$	Nombre de Reynolds = $\frac{\text{contrainte inertielle}}{\text{contrainte de viscosité}}$
Sc	$\frac{\nu}{D_m}$	Nombre de Schmidt = $\frac{\text{diffusivité de la qté de mouvement}}{\text{diffusivité d'une espèce ds un mélange}}$
X _s	$\frac{Y}{Y_{ST}}$	Indice de ségrégation
y	$\frac{\delta}{d_h}$	Epaisseur de l'insert hélicoïdal sur diamètre du tube
Y	$\frac{n_{\text{consommé}}}{n_{\text{initial}}}$	Sélectivité

Nombres adimensionnels grecs

Λ	4f	Coefficient de Darcy
---	----	----------------------

Lettres romaines

a	m	Hauteur du canal
A	m ²	Aire d'échange
A _{λnm}		Absorbance à une longueur d'onde donnée λ
b	m	Largeur du canal
C	mol·m ⁻³	Concentration volumique
C _p	J·kg ⁻¹ ·K ⁻¹	Capacité thermique massique
D _A	m ² ·s ⁻¹	Coefficient de diffusion axiale
d _h	m	Diamètre hydraulique
E(t)	s ⁻¹	Distribution des temps de séjour

F_c	N	Norme de la force centrifuge
F	$m^3 \cdot s^{-1}$	Débit volumique
h	$W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$	Coefficient de transfert de chaleur local
K	$L \cdot mol^{-1}$	Constante de réaction
l	m	Chemin optique
L	m	Longueur de canalisation
M	$kg \cdot mol^{-1}$	Masse molaire
m	kg	Masse
\dot{m}	$kg \cdot s^{-1}$	Débit massique
N_{bacs}	-	Nombre équivalent de bacs parfaitement agités
N_{coudes}	-	Nombre de coudes
$n(t)$	mol	Nombre de moles à l'instant t
\dot{n}	$mol \cdot s^{-1}$	Débit molaire
P	Pa	Pression
P_m	m	Périmètre mouillé
Q	W	Quantité de chaleur
R_c	m	Rayon de courbure
R	m	Rayon de la canalisation
S	m^2	Section de passage
T	K	Température
t_c	s	Temps de coulée
t_D	s	Temps caractéristique de diffusion moléculaire
t_m	s	Temps de mélange
\bar{t}	s	Temps de séjour moyen
U	$W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$	Coefficient global de transfert de chaleur
V	m^3	Volume réactionnel
v	$m \cdot s^{-1}$	Vitesse débitante

Lettres grecques

ΔH_r	$J \cdot mol^{-1}$	Enthalpie de réaction
ΔT_{ad}	K	Élévation adiabatique de température
δ	m	Épaisseur de l'insert hélicoïdal
ε	$m^2 \cdot s^{-3}$	Taux de dissipation énergétique
$\varepsilon_{\lambda nm}$	$m^2 \cdot mol^{-1}$	Coefficient d'extinction molaire pour un composé donné
θ	°	Angle des ondulations
λ	$W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$	Conductivité thermique
μ	$Pa \cdot s^{-1}$	Viscosité dynamique
ν	$m^2 \cdot s^{-1}$	Viscosité cinématique
ρ	$kg \cdot m^{-3}$	Masse volumique
τ_p	Pa	Contrainte de frottement à la paroi

Indices

1	Relatif à la ligne principale d'alimentation
---	--

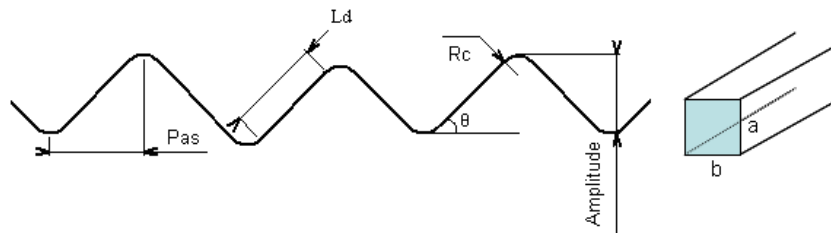
ext	Relatif à l'extérieur de la courbure
i	Espèce i
inj	Relatif à la ligne d'injection
int	Relatif à l'intérieur de la courbure
p	Relatif au fluide procédé (dans les canaux ondulés)
r	Coordonnée radiale
T	Turbulent
ST	Situation totalement ségrégée
u	Relatif au fluide utilité (eau de refroidissement)
x	Abscisse
z	Coordonnée axiale

Exposants

0	Etat initial
1 à 8	Position des thermocouples
in	Entrée de la maquette
out	Sortie de la maquette

ANNEXE A – Géométrie des canaux

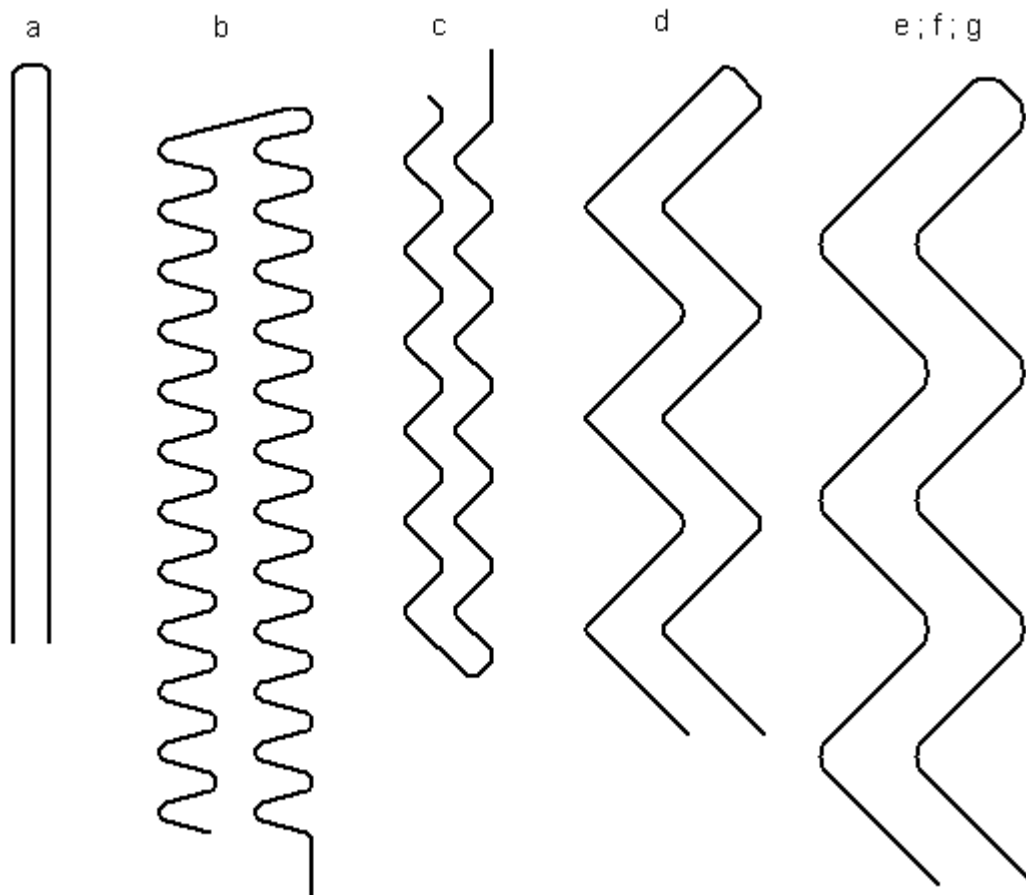
Paramètres géométriques caractérisant le canal ondulé :

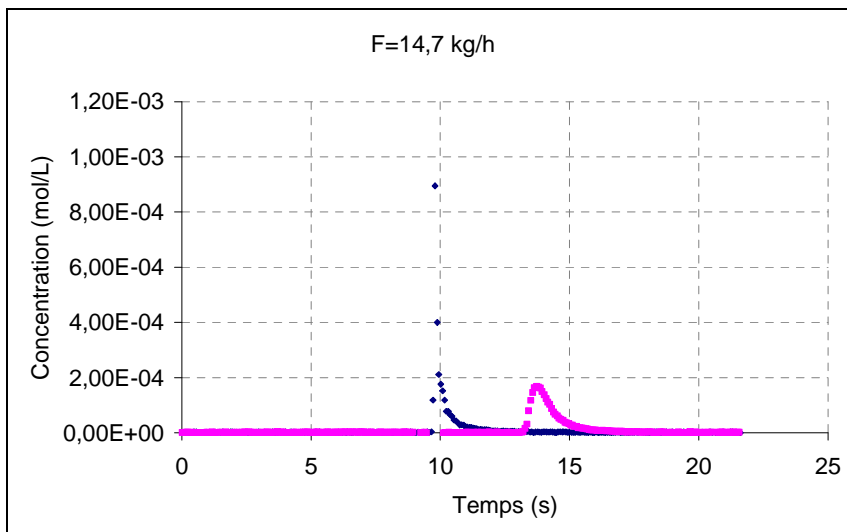
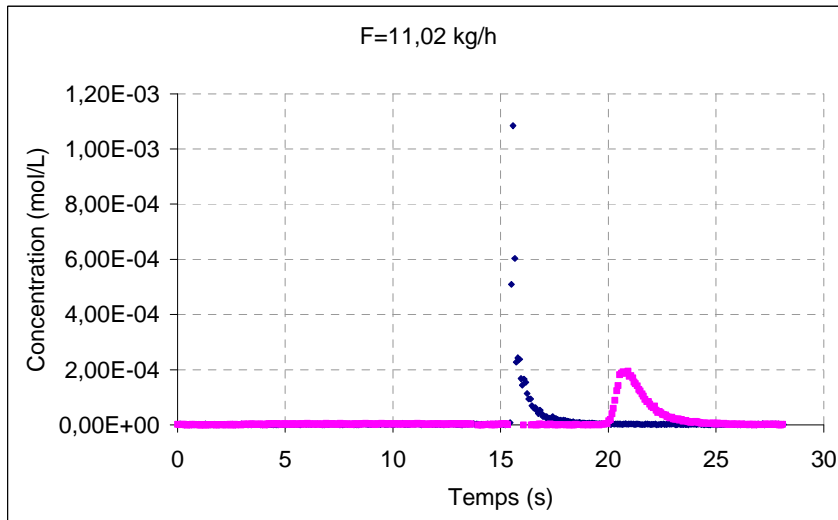
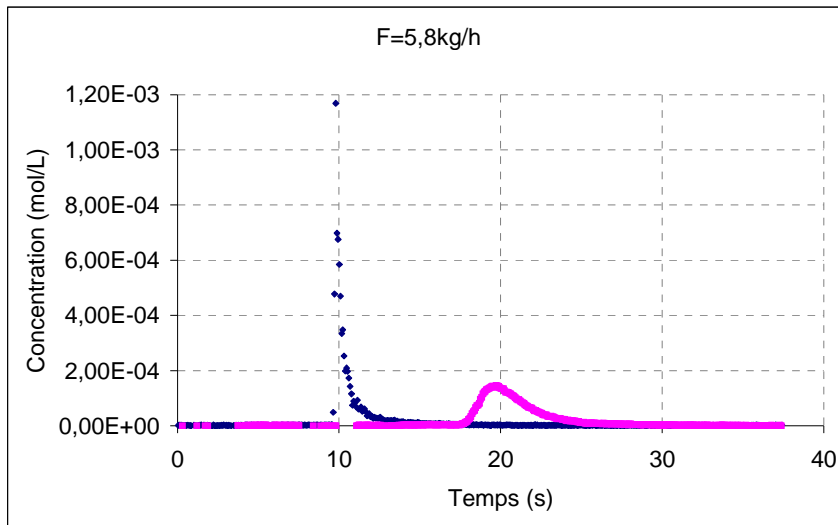


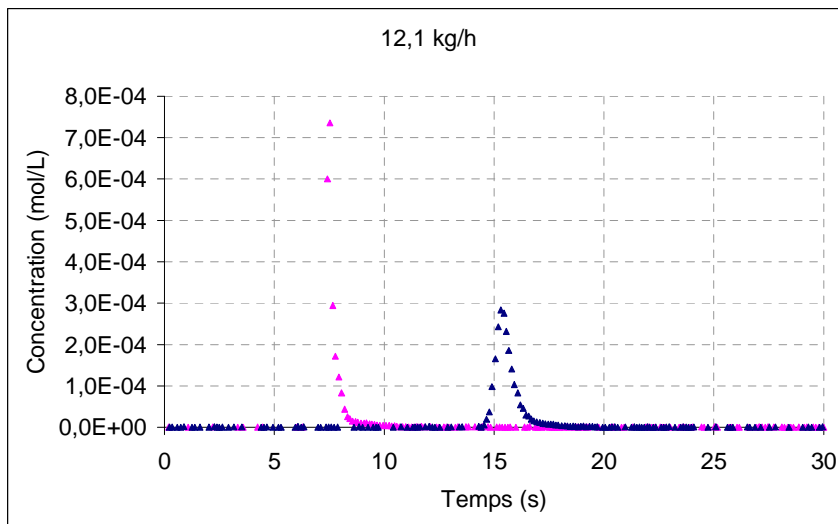
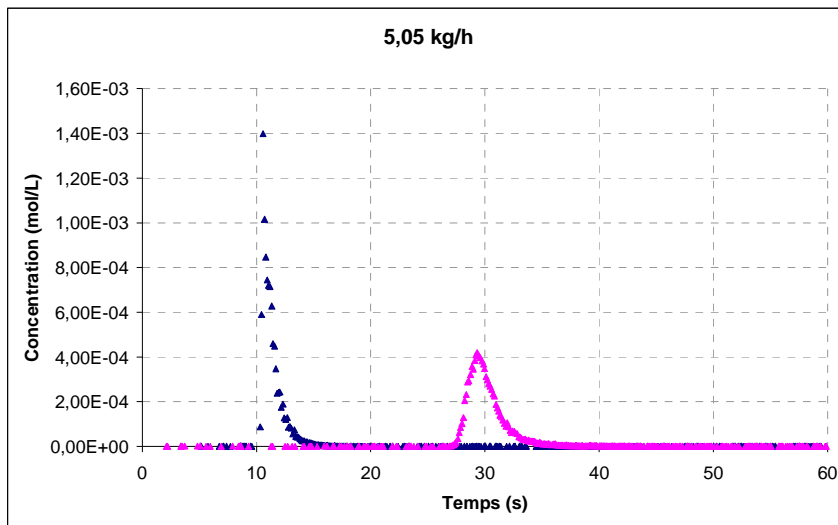
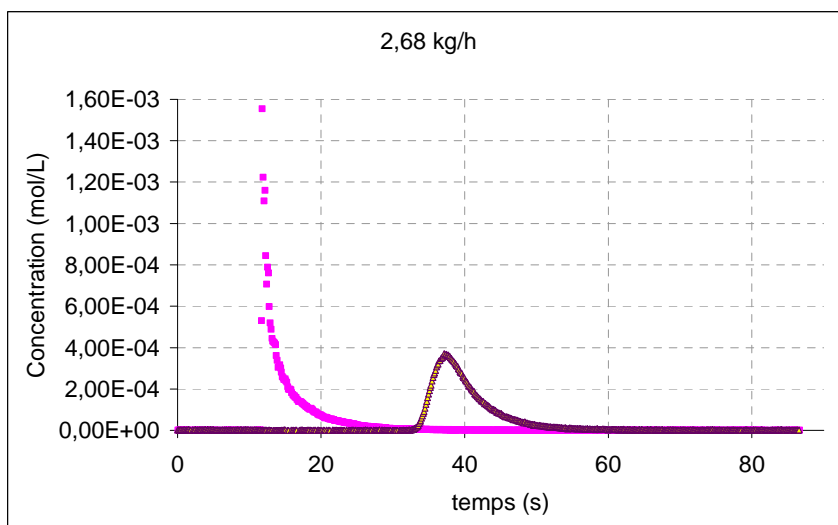
Récapitulatif des paramètres géométriques et des notations pour les maquettes :

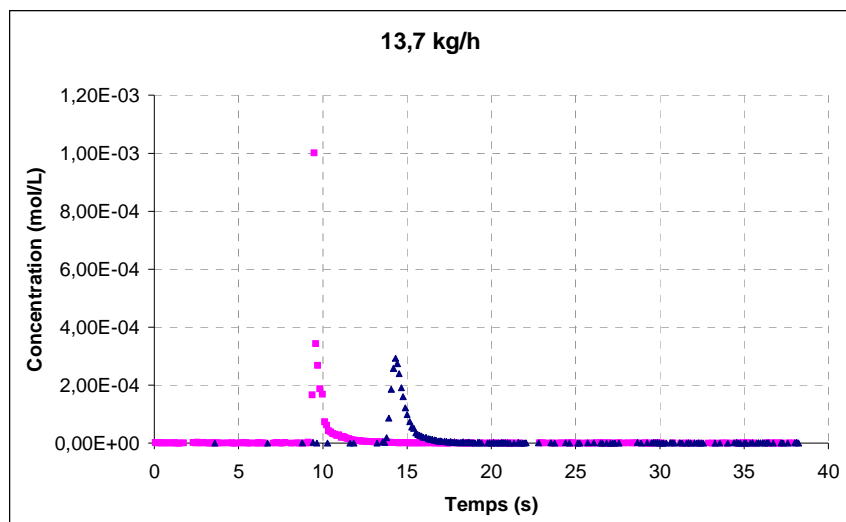
Maquette n°	R_c (mm)	L_d (mm)	θ	b/a (mm)
a	-	90	-	2/2
b	1,5	6,94	75°	2/2
c	1,5	6,94	45°	2/2
d	1,5	20,28	45°	2/2
e	4	20,28	45°	2/2
f	4	20,28	45°	2/4
g	4	20,28	45°	4/4

Récapitulatif des géométries à l'échelle 1 :

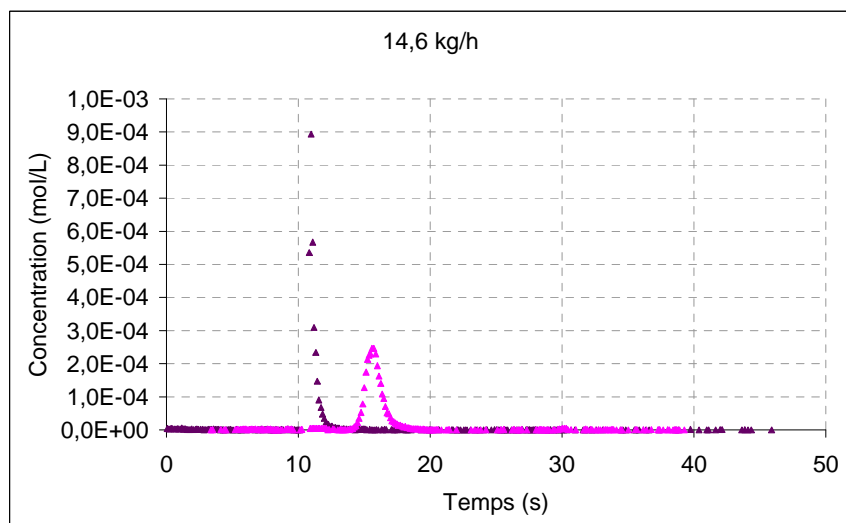
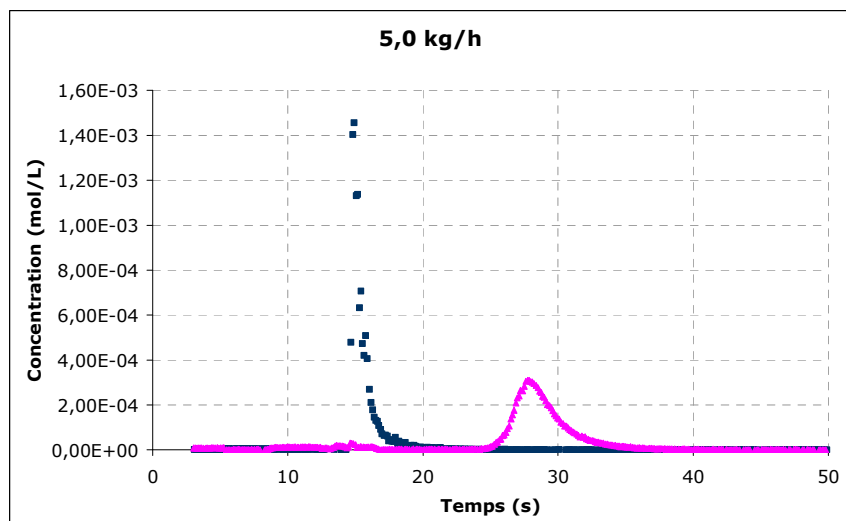


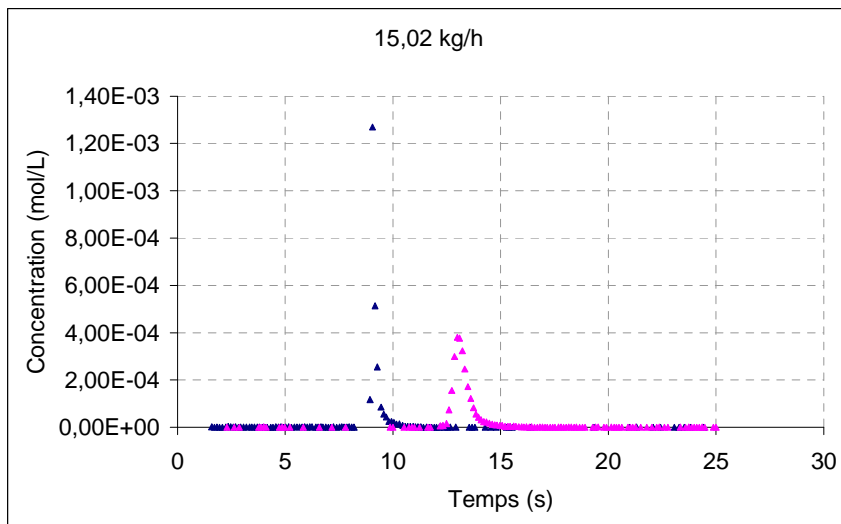
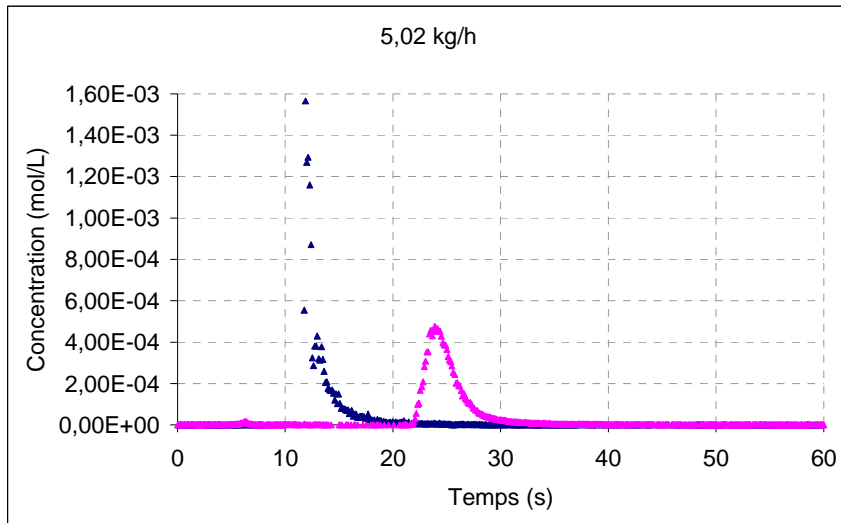
ANNEXE B – Graphes de DTS expérimentalesMaquette 'a' :

Maquette 'b' :Maquette 'c' :



Maquette 'd' :



Maquette 'e' :

ANNEXE C – Données expérimentales concernant le mélange global.

Maquette	F_{iode} ($L \cdot h^{-1}$)	F_{thio} ($L \cdot h^{-1}$)	F_{total} ($L \cdot h^{-1}$)	v ($m \cdot s^{-1}$)	Re	De	L_m (m)	t_m (s)
'a'	2,50	2,50	5.0	0.35	694	-	187.3	0.54
	5,06	4,93	9.99	0.69	1388	-	97.3	0.14
'b'	1,135	1,125	2,26	0,16	314	362	66,8	0,42
	0,757	0,754	1,511	0,11	210	242	103,4	0,98
	0,504	0,499	1,003	0,07	139	161	136	1,95
	2.51	2.44	4.95	0.34	688	794	34.2	0.1
	4.98	4.97	9.95	0.69	1382	1596	34.2	0.05
'c'	1,126	1,128	2,254	0,16	313	361	52	0,33
	0,755	0,751	1,506	0,10	209	242	114,1	1,09
	0,502	0,498	1	0,07	139	160	171,9	2,47
	2.56	2.47	5.03	0.35	699	807	40.4	0.12
	4.99	5.00	9.99	0.69	1388	1602	49.7	0.07
'd'	1,107	1,122	2,229	0,16	310	357	92,9	0,60
	0,764	0,733	1,497	0,10	208	240	128	1,23
	0,48	0,495	0,975	0,07	135	156	171	2,52
	2.50	2.49	4.99	0.35	693	800	60.1	0.17
	5.07	5.04	10.11	0.70	1404	1621	105.4	0.15
'e'	1.16	1.051	2.21	0.15	307	251	198.4	1.29
	0.78	0.76	1.54	0.11	213	174	204.7	1.92
	0.49	0.50	1.00	0.07	138	113	569.6	8.23
	2.49	2.46	4.95	0.34	688	496	108.6	0.43
	4.99	5.03	10.02	0.70	1392	984	51.4	0.21

F_{iode} : Débit volumique d'iode ($L \cdot h^{-1}$)

F_{thio} : Débit volumique de thiosulfate de sodium ($L \cdot h^{-1}$)

F_{total} : Débit volumique total ($L \cdot h^{-1}$)

V : Vitesse du fluide ($m \cdot s^{-1}$)

Re : Nombre de Reynolds

De : Nombre de Dean

L_m : Longueur de mélange (m)

t_m : Temps de mélange (s)

Etude de l'influence de la géométrie des canaux sur les performances d'un réacteur/échangeur.

Le couplage de la réaction et de l'échange thermique au sein du même appareil est intéressant lors de la mise en œuvre de synthèses exothermiques. L'appareil étudié est un échangeur/réacteur fonctionnant en continu dont la structure est basée sur celle des échangeurs de chaleur à plaques. Le passage du batch au continu n'est pas sans difficultés et une des manières d'intensifier les transferts tout en conservant un temps de séjour suffisant (régime laminaire) est de structurer, en 2D, le chemin réactionnel.

Les caractérisations expérimentales et numériques de différentes géométries de canaux ondulés ont permis de comprendre les mécanismes qui influencent les performances thermo-hydrauliques et le comportement des écoulements. Des corrélations reliant les critères de performance au nombre de Dean ont été établies et la démarche d'optimisation d'une géométrie en fonction des contraintes d'utilisation a pu être définie.

Les premiers pas vers l'extrapolation font l'objet de la dernière partie de ces travaux et présentent un enjeu important pour le développement industriel de ces technologies. Les résultats de cette étude ont souligné l'intérêt d'un paramètre adimensionnel caractéristique : le nombre de Dean interne, qui permet de conserver les performances thermo-hydrauliques et donc de prédire leur évolution lors du processus de changement de taille.

Mots-Clés : Intensification des procédés, Réacteur/échangeur, Canaux ondulés, Nombre de Dean, Extrapolation.

Study of the channels' geometry impact on the performances of a heat reactor/exchanger.

Coupling reaction and heat transfer in the same unit is an interesting way to perform exothermic reactions. The studied apparatus is a continuous heat exchanger/reactor. Its structure is based on plate heat exchangers' one. The main difficulty when transposing batch reactions to continuous ones is to intensify the heat and mass transfers and maintain at the same time enough residence time (laminar regime). A way to remove this barrier is to structure in two dimensions the chemical path in order to obtain a wavy channel.

The experimental and numerical characterizations of several wavy geometries allowed us to understand the mechanisms' impact on the thermo-hydraulic performances and on the flow behaviour. The performances criteria have been correlated to the Dean number and the optimisation of the geometry has been made according to industrial specifications.

Finally, the scale-up procedure has been studied. Our results showed that the conservation of a characteristic number: the internal Dean number allows the prediction of the performances and of the flow behaviour when the characteristic size of the wavy channel increases.

Key-words: Process intensification, Heat exchanger/reactor, wavy channel, Dean number, Scale-up.