



AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE
École Nationale Supérieure des Industries Chimiques de Nancy
Laboratoire Réactions et Génie des Procédés, UPR 3349 CNRS

Ecole Doctorale :
Sciences et Ingénierie des Ressources, Procédés, Produits, Environnements

THÈSE

Présentée à

L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Pour l'obtention du grade de

DOCTEUR DE L'INPL

Spécialité : Génie des procédés et des produits

Par

KANE Abdoulaye

Conception et Caractérisation d'un microcontacteur à film tombant : concept de distillation microstructurée

Soutenue publiquement le 10 décembre 2010 devant le jury composé de :

Rapporteurs :	M.	Vincent GERBAUD	Chargé de Recherche, LGC, Toulouse
	M.	David BRUTIN	Maître de Conférences-HDR, IUSTI, Université de Provence
Examineurs :	Mme	Christine ROIZARD	Professeur, ENSIC, Nancy Université (INPL)
	Mme	Lingai LUO	Professeur, Polytech Savoie, Chambéry
	M.	Laurent FALK	Directeur de Recherche CNRS, LRGP Nancy
	M.	Hubert MONNIER	Maître de Conférences, IUT Nancy Brabois, Nancy Université (UHP)
Invités :	Mme	Viviane RENAUDIN	Professeur, IUT Nancy Brabois, Nancy Université (UHP)
	M.	Jean-François PORTHA	Maître de Conférences, ENSIC, Nancy Université (INPL).

TABLE DES MATIERES

REMERCIEMENTS	IV
INTRODUCTION GÉNÉRALE	8
CHAPITRE I : ANALYSE BIBLIOGRAPHIQUE.....	6
INTRODUCTION	7
1. DISTILLATION	8
1.1 EQUILIBRE LIQUIDE VAPEUR.....	8
1.2 DISTILLATION DE MELANGES BINAIRES.....	12
2. INTENSIFICATION DE LA DISTILLATION	15
2.1 DES TRANSPORTS NECESSAIRES.....	16
2.2. IRREVERSIBILITES THERMODYNAMIQUES.....	17
2.3. L'EXERGIE	17
2.4. LA PUISSANCE DE SEPARATION	18
2.5. LA DISTILLATION DIABATIQUE	19
3. INTENSIFICATION DES PROCEDES	22
3.1 HISTORIQUE ET DEFINITION DE L'INTENSIFICATION DES PROCEDES	22
3.2 INTENSIFICATION PAR LE BIAIS DES « EQUIPEMENTS »: LES MICRO-PROCEDES.....	26
3.2.1 Intérêts des micro-procédés.....	27
3.2.2 Contraintes des micro- procédés.....	28
4. MICRO-DISTILLATION : ETAT DE L'ART ET EXEMPLES DE REALISATIONS	30
5. HYDRODYNAMIQUE DES FILMS TOMBANTS	36
5.1 REGIMES D'ECOULEMENTS	36
5.2 EPAISSEURS DES FILMS TOMBANTS CLASSIQUES	38
5.3 EVALUATION DES EPAISSEURS DE FILMS TOMBANTS EN MICRO-CANAU.....	39
5.4 POURQUOI MICRO-STRUCTURER ?.....	43
5.4.1 Influence de la structuration sur la stabilisation du film tombant	45
5.4.2 Mouillage des plaques et équipartition de l'écoulement sur la structure.....	46
5.4.2.1 Mouillabilité des plaques.....	46
5.4.2.2 Méthodes de caractérisation de l'équipartition de l'écoulement.....	48
6 GENERALITES EN EBULLITION : L'EXPERIENCE DE NUKIYAMA.....	50
7 EBULLITION CONVECTIVE.....	52
8 MECANISME DE LA NUCLEATION DE BULLES SUR UNE SURFACE CHAUFFEE.....	55
9 TRANSFERT DE CHALEUR EN FILMS TOMBANTS	56
9.1 EVAPORATION DE FILMS TOMBANTS EN REGIME LAMINAIRE NON-NUCLEE : CORRELATIONS.....	57
9.1.1 Théorie de Nusselt (1916) : Corrélation en régime laminaire	57
9.1.2 Corrélation de Chun et Seban en régime laminaire avec vaguelettes	58
9.2 EBULLITION NUCLEEE EN FILMS TOMBANTS: CORRELATIONS	63
9.3 TRANSFERT DE CHALEUR DE MELANGES BINAIRES EN FILM TOMBANT.....	64
9.4 APPARITION DE ZONES SECHES EN FILM TOMBANT	65
10. TRANSFERT DE CHALEUR EN MICRO-CANAU.....	67
10.1 CORRELATIONS EN MONOPHASIQUE LIQUIDE : CORPS PUR (OBTENUES EN MICROCANAU)	68
10.2 CORRELATIONS SUR L'EBULLITION EN MICRO-CANAU.....	71
10.3 EBULLITION DE MELANGES BINAIRES EN MICRO-CANAU.....	75
CONCLUSION	76
CHAPITRE II : MATERIEL ET METHODES	77
INTRODUCTION	78
1. CONSTRUCTION ET DESCRIPTION DU MICRO-CONTACTEUR A FILMS TOMBANTS.....	79

1.1	USINAGE DES MICRO-CANAUX.....	81
1.2	CLASSIFICATION DES MICRO-CANAUX.....	82
1.3	PRESENTATION ET CARACTERISATION DES PLAQUES.....	83
1.3.1	Evaluation des aires de transferts.....	84
1.3.1.1	Aire interfaciale spécifique de transfert de matière.....	84
1.3.1.2	Aire interfaciale spécifique de transfert thermique.....	85
1.3.1.3	Débit volumique de mouillage.....	87
1.3.2	Etat de surface des plaques.....	89
1.4	DESCRIPTION DU CIRCUIT DE CHAUFFE.....	91
2	MONTAGE EXPERIMENTAL ET CONDITIONS OPERATOIRES.....	94
2.1	FONCTIONNEMENT DU MICRO-CONTACTEUR A FILMS TOMBANTS.....	94
2.2	DESCRIPTION DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL ET MISE EN ŒUVRE.....	96
2.2.1	Dispositif expérimental.....	96
2.2.2	Les éléments auxiliaires.....	99
2.2.2.1	Thermocouples.....	99
2.2.2.2	Système de régulation de la température de vapeur.....	100
2.2.2.3	Le condenseur.....	102
2.3	PRODUITS ET SYSTEME BINAIRE ETHANOL /N-PROPANOL.....	102
2.3.1	Choix et propriétés des produits étudiés.....	102
2.3.2	Propriétés physiques et thermodynamiques du mélange.....	103
2.3.3	Chromatographie en phase gazeuse.....	104
3	MODE OPERATOIRE.....	106
3.1	DEMARCHE EXPERIMENTALE.....	107
3.2	TEMPS DE REPOSE DU SYSTEME.....	108
3.3	CONDITIONS OPERATOIRES.....	112
3.4	INCERTITUDES DE MESURES ET REPRODUCTIBILITE DES EXPERIENCES.....	112
	CONCLUSION.....	113
	CHAPITRE III : CARACTERISATION DU SYSTEME EXPERIMENTAL ET ETUDE DU TRANSFERT THERMIQUE DANS LE MICRO-CONTACTEUR A FILM TOMBANT.....	114
	INTRODUCTION.....	115
1	CONDITIONS EXPERIMENTALES.....	116
2	PROTOCOLE EXPERIMENTAL ET METHODES.....	116
2.1	CARACTERISATION THERMIQUE DU MICRO-CONTACTEUR.....	117
2.2	EVALUATION DU COEFFICIENT DE TRANSFERT DE CHALEUR.....	119
3	RESULTATS EXPERIMENTAUX.....	120
3.1	IDENTIFICATION DES REGIMES D'EBULLITION ET MISE EN EVIDENCE DES ZONES SECHES.....	121
3.2	LONGUEURS CARACTERISTIQUES.....	126
3.3	INFLUENCE DU FLUX DE CHAUFFE ET DU DEBIT.....	128
4.	COEFFICIENTS DE TRANSFERT DE CHALEUR.....	134
4.1	COMPARAISONS AVEC LES CORRELATIONS ETABLIES POUR LES MICRO-CANAUX.....	136
4.2	COMPARAISONS AVEC LES CORRELATIONS ETABLIES POUR LES FILMS TOMBANTS.....	140
5	DIFFERENCES D'EBULLITION ENTRE L'ETHANOL PUR ET LE MELANGE BINAIRE ETHANOL/PROPANOL.....	142
	CONCLUSION.....	145
	CHAPITRE IV : POTENTIEL DU MICRO-CONTACTEUR A FILMS TOMBANTS A SEPARER UN MELANGE BINAIRE ETHANOL/N-PROPANOL.....	146
	INTRODUCTION.....	147
1	CONDITIONS EXPERIMENTALES.....	147
2	PROTOCOLE EXPERIMENTAL.....	148
3	RESULTATS EXPERIMENTAUX.....	149

3.1	REGIMES D'EBULLITION	151
3.2	EVAPORATION ET POTENTIEL DE SEPARATION.....	157
3.3	INFLUENCE DU DEBIT D'ALIMENTATION	163
3.4	PERFORMANCES DU MICRO-CONTACTEUR EN TERMES DE PUISSANCE DE SEPARATION	168
	CONCLUSION	171
	CONCLUSION GENERALE	173
	PERSPECTIVES	175
	NOTATIONS	179
	REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....	182
	ANNEXES	191
	LISTE DES FIGURES	208
	LISTE DES TABLEAUX.....	212

A mes parents

REMERCIEMENTS

Ce travail de thèse a été réalisé au sein du Laboratoire Réactions et Génie des Procédés (LRGP). Il a été financé par le Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche (MESR) et le Programme Interdisciplinaire Energie du CNRS (Projet REDINGOTE).

Je remercie Messieurs les Professeurs Michel SARDIN et Gabriel WILD successivement Directeurs LRGP (anciennement LSGC), de m'avoir accueilli et intégré au sein du laboratoire.

Je tiens à remercier tout particulièrement et à exprimer toute ma profonde gratitude à Monsieur Laurent FALK, Directeur de ma thèse (Directeur de recherche au CNRS) et à Monsieur Hubert MONNIER, Co-directeur de ma thèse (Maitre de Conférences à l'IUT Nancy Brabois). J'ai beaucoup appris à leurs côtés, j'ai eu le grand privilège de bénéficier de leurs compétences scientifiques. Je les remercie pour toute la confiance qu'ils m'ont accordée. Leurs précieux conseils et leurs bienveillances m'ont grandement aidé et accompagné tout au long de cette thèse.

Je remercie chaleureusement Messieurs, Vincent GERBAUD et David BRUTIN d'avoir accepté de juger ce travail et d'en être les rapporteurs, qu'ils trouvent ici l'expression de ma profonde reconnaissance.

Je remercie énormément Mesdames Lingai LUO, Christine ROIZARD et Viviane RENAUDIN de m'avoir fait l'honneur d'examiner ce travail lors de la soutenance de thèse.

Je tiens à remercier Monsieur Jean François PORTHA qui a contribué à la réalisation de ce projet, nos précieux échanges m'ont été très bénéfiques et prolifiques.

Je remercie sincèrement Monsieur Daniel TONDEUR (Directeur de Recherche CNRS, Emérite) pour sa participation à ce travail, de m'avoir fait bénéficier de ses compétences scientifiques. Nos discussions furent chaleureuses et nombreuses.

Je tiens également à remercier toutes les personnes du laboratoire LRGP de Nancy, de l'ENSIC, et de l'ENSC Rennes avec qui j'ai eu l'occasion d'échanger sur diverses thématiques de recherches et/ou qui m'ont fait l'honneur d'assister à ma soutenance de thèse.

Ce travail n'aurait pu être réalisé sans la contribution du personnel technique et administratif du laboratoire LRGP. Je remercie chaleureusement tout le personnel de l'atelier dirigé par Pascal BEAURAIN. Je remercie également Mathieu WEBER, Abdelkarim BENHARA pour le développement de la partie régulation et acquisition des données. Merci à Steve PONTVIANNE, Xavier FRAMBOISIER, Helene POIROT, Emilien GIROT et Gérard PATERNOTTE, pour leurs disponibilités et leurs aides tout au long de ma thèse. Je remercie sincèrement Véronique STOLF pour son aide précieuse.

Je tiens à remercier Matthieu TEISSIER, Celia ZAMPIERO et Jonathan PRIOUX pour leur contribution à ce travail par le biais de leurs stages de fin d'étude.

L'aspect humain étant indispensable au bon déroulement d'une thèse, je tiens à remercier chaleureusement tous les membres de l'équipe PRISM, je pense à mes très chers collègues et amis de bureaux : Florent (et ses "Yop"), Stephan (nos marathons à travers les "micromontagnes" de la Lorraine et ce, quelque soit la météo demeureront mémorables), Marie-Claire, Mamadou. Un grand Merci à Maggy AULON pour son aide précieuse sur le plan administratif, elle a aussi le don d'illuminer nos visages dès le matin avec ses délicieux gâteaux fait maison.

Merci à mes chers collègues et amis qui ont tant contribué à créer une bonne ambiance au LRGP et qui ont fait de chaque jour passé en Lorraine, une agréable journée remplie de bonne humeur et, de joie de vivre : Neila, Halima, Paola, Marie, Meryem, Mehdi, Sophie, Sara, Hala, Ali, Valerio, Nouceiba, Patricia, Antoine, les Olivier (AUTHIER, COHIN, POTIER), Georges, Nadia, Christian, Jean-Marie, Thierry, Clémence, Lety, Jacques, Wei, Abdel, Christel, Roberto, Nathalie, Sabine...la liste est loin d'être exhaustive.

Je dédie cette thèse à toute ma Famille et à mes Amis, je les remercie de m'avoir accompagné tout au long de ces années et de m'avoir soutenu dans les moments les plus difficiles.

A la mémoire de ma Mère, de mon Père et de mon Frère (Mamadou A.KANE). Ce travail vous est dédié.

Abdoulaye KANE

Quoi qu'il arrive, j'apprends.

Je gagne à tout coup.

Marguerite Yourcenar

INTRODUCTION GÉNÉRALE

Introduction générale

Cette thèse a été réalisée au sein du Laboratoire Réactions et Génie des Procédés de Nancy, plus précisément au sein de l'équipe PRISM. Les recherches et développements menés dans cette équipe s'inscrivent dans le contexte de la chimie durable. Ils visent par une intégration d'équipements intensifiés (mélangeurs, réacteurs, échangeurs, séparateurs, ...) micro et méso-structurés à améliorer de façon drastique l'efficacité des procédés chimiques industriels (augmentation de la qualité de production, réduction des déchets et de la consommation énergétique, meilleure sécurité, plus grande flexibilité de production, diminution des étapes d'extrapolation et de transposition).

À l'heure actuelle, les recherches sont essentiellement tournées vers les réacteurs microstructurés et intensifiés. Il existe cependant de réels besoins dans le domaine des séparateurs et cette thèse s'inscrit dans cet axe. Ce besoin répond en particulier à l'objectif de miniaturisation des équipements pour répondre aux enjeux sociétaux (chimie durable). Les séparateurs microstructurés associés aux réacteurs microstructurés (réacteurs multifonctionnels ou non) permettront de développer des mini-usines qui pourront traiter en continu les débits modérés afin de répondre aux besoins de production à la demande et du traitement sur site de produits à forte valeur ajoutée, ou de produits dangereux (cf directive européenne REACH¹). Ces mini-usines sont également une réponse intéressante à la problématique de la dépollution sur site.

Dans ce contexte, les objectifs de la thèse sont doubles :

- proposer, construire et mettre au point un équipement miniaturisé de séparation,
- intensifier les transferts de matière et de chaleur afin d'augmenter l'efficacité exergétique d'une colonne à distiller,
- comprendre les mécanismes de transfert thermique au sein d'un dispositif alliant à la fois les technologies de micro-canaux et de films tombants.

La fabrication des garnissages microstructurés permet de former et de stabiliser des films liquides très minces en évitant la formation de zones sèches. L'aire interfaciale spécifique et l'efficacité de transfert de matière entre les deux phases liquide et gaz sont alors augmentées par rapport à un support classique. Afin d'arriver à ce but, cette thèse s'est orientée vers la conception et l'étude du fonctionnement d'une unité de distillation basée sur les films tombants. Cependant, la compacité des équipements peut présenter des difficultés majeures : la force motrice de gravité, indispensable à la séparation des phases, risque d'être très faible; la grande conductivité

¹ REACH est le règlement de l'Union Européenne (UE) sur l'enregistrement, l'évaluation, l'autorisation et les restrictions des substances chimiques. Il est entré en vigueur le 1^{er} juin 2007.

thermique du matériau (métal) peut induire une homogénéité thermique du système au détriment de la gestion de gradients thermiques indispensable à une séparation efficace des constituants. La forme géométrique de l'appareil constitue donc un paramètre essentiel à son bon fonctionnement.

Environ 40% de l'énergie consommée dans les industries chimiques et raffineries est attribuée à la séparation par la distillation (Cachot, 1992). Un des objectifs de la thèse est donc l'intensification des transferts de matière et de chaleur afin d'augmenter l'efficacité exergetique d'une colonne à distiller. En effet un dispositif de distillation conventionnelle se compose principalement de trois parties : le bouilleur où la chaleur est fournie à une température relativement élevée, le condenseur où la chaleur est extraite et la colonne supposée adiabatique. L'écart de température entre les deux extrémités de la colonne implique une efficacité exergetique faible car la séparation des produits nécessite une transformation de l'énergie thermique à haut niveau (bouilleur) de température en énergie de bas niveau (condenseur).

Plusieurs théories ont été avancées afin d'améliorer l'efficacité exergetique de la distillation, mais très peu d'entre elles ont été mises en application, car aboutissant le plus souvent sur des procédés très coûteux du point de vue de la mise en œuvre, et suscitant peu d'intérêt parfois chez l'industriel ; certains de ces procédés présentent aussi des contraintes de flexibilité.

Cette étude s'intéresse particulièrement au concept de la distillation diabatique. Les quelques études menées sur la distillation diabatique ont montré qu'elle est le procédé de distillation qui diminue le plus les irréversibilités, donc offrant une meilleure efficacité exergetique. Le principal but étant en partie d'explorer les voies et moyens permettant des économies d'énergie en augmentant l'efficacité exergetique.

La distillation diabatique est un procédé de séparation dans lequel la chaleur est transférée à l'intérieur de la colonne par opposition aux colonnes adiabatiques classiques où la chaleur est seulement fournie au bouilleur et extraite à partir du condenseur. Le principe consistant à remplacer le bouilleur et le condenseur par des échangeurs de chaleur qui ont pour rôle de répartir la chaleur tout long de la colonne en vue de réduire au minimum le taux global de production d'entropie tout en maximisant le rendement exergetique (Rivero,1993) ; ainsi que la répartition uniforme de la chaleur.

De tels dispositifs ont été étudiés dès les années 70 et suscitent encore aujourd'hui un intérêt croissant car une répartition tout au long de la colonne des fonctions de chauffage du rebouilleur et de refroidissement du condenseur implique aussi une augmentation des gradients thermiques.

Nous essayerons d'explorer avec les outils de la microfluidique et d'intensification des procédés, comment procéder pour réduire au minimum ces irréversibilités. Cela suppose des modifications technologiques (microrainuration des plaques...). L'impact de cette technologie de microstructuration et d'intensification des transferts sur les procédés industriels est énorme sachant que parmi les procédés de séparation, la distillation est l'une des opérations unitaires qui dégrade le plus d'énergie.

Les technologies microstructurées se distinguent par leurs surfaces spécifiques élevées, leur faible temps de séjour et leurs puissances thermiques importantes qu'elles permettent d'échanger par unité de surface. Le transfert de chaleur et le transfert de matière sont plus rapides dans de telles microstructures comparées aux technologies conventionnelles. En raison de ces propriétés, les systèmes microstructurés offrent une sécurité des procédés renforcée, des risques et dégradations de l'environnement amoindris ainsi qu'une meilleure rentabilité des procédés.

Cependant, dans les procédés de séparation, la compacité de tels équipements peut présenter des difficultés majeures : d'une part, la force motrice de gravité, indispensable à la séparation des phases, est très faible. Il existe de ce fait une augmentation possible de la résistance au transfert du côté du film tombant. Pour pallier à cela on travaille avec des garnissages microstructurés permettant de former et de stabiliser des films liquides très minces. Ceci permet de diminuer la résistance au transfert côté film tombant tout en évitant la formation de zones sèches. L'utilisation de films très minces, par l'intensification du flux de transfert de matière permet des séparations très efficaces, même sur de faibles longueurs.

Un microcontacteur à film tombant a été conçu et fabriqué. Ses performances ont été évaluées d'un point de vue qualitatif (pureté du distillat et du soutirat) et quantitatif (rapports des débits entrant et sortant) mais aussi en intégrant la notion d'exergie compositionnelle, appelé aussi puissance de séparation.

L'ensemble des travaux menés sont regroupés dans quatre chapitres :

Le premier est dédié à l'étude bibliographique sur l'intensification de la distillation et des procédés en général, les différents régimes d'ébullition (expériences de Nukiyama), l'hydrodynamique et le transfert thermique en films tombants sur supports lisses et dans des microcanaux. Le second chapitre décrit la conception du micro-contacteur, le montage et le protocole expérimental utilisés.

Enfin, l'étude porte d'une part sur la caractérisation thermique par le biais de l'étude du transfert de chaleur et la génération de gradients thermiques dans le micro contacteur à film tombant

(Chapitre 3) et d'autre part sur l'évaluation du potentiel de ce micro système à séparer un mélange binaire constitué d'éthanol et de *n*-propanol (Chapitre 4).

L'enjeu de cette étude concerne non seulement les procédés micro-structurés mais plus généralement les (macros) procédés de transformation de la matière nécessitant soit des gradients thermiques contrôlés ou des étagements de température. L'intensification de ces procédés par micro-structuration peut aussi à moyen terme permettre une utilisation plus rationnelle de l'énergie qui à l'heure actuelle reste très peu développée.

Les travaux présentés dans cette thèse ont conduit à ce jour aux productions scientifiques suivantes :

Publication dans une revue internationale avec comité de lecture

- P1. **2010** Capability of a micro-structured falling film for the separation of binary mixtures (A. KANE, H.MONNIER, D. TONDEUR, L. FALK) -Special Issue IMRET 11 Chemical Engineering journal (2011), 167, pp455-467.

Communication orale un congrès international avec comité de lecture et acte publié

- CO1. **2010** Communication orale: Microstructured Distillation Unit Based on a Falling Film Contactor (A. KANE, H.MONNIER, J-F.PORTHA, L. FALK) - **IMRET 11, 11th International Conference on Microreaction Technology, Kyoto, Japan, Mars 2010.**

Communications orale dans un congrès national avec comité de lecture et acte publié

- CO2. **2009** Communication orale, avec acte. Etude expérimentale de faisabilité de la distillation microstructurée à film tombant pour la conception d'un microdistillateur diabatique structurée (A. KANE, H.MONNIER, D.ALONSO, T.CACHOT, L. FALK) **page 1-6**– ISBN : 2-910239-72-1-**XIIème Congrès de la Société Française de Génie des Procédés (SFGP), Marseille, France, Octobre 2009.**

Communications dans des congrès divers

- C1. Projet **Rationalisation Energétique de la Distillation par l'Intensification et la Gestion Optimale des Transferts pour l'Environnement** (H.Monnier, A. Kane, D.Alonso, D.Tondeur, J-F. Portha, T. Cachot, L.Falk, O. Fudym, B. Ladevie), **Colloque du Programme Interdisciplinaire Energie du CNRS, Montpellier, 28-30 Mars 2011.**
- C2. Projet **Rationalisation Energétique de la Distillation par l'Intensification et la Gestion Optimale des Transferts pour l'Environnement** (H.Monnier, A. Kane, D.Alonso, D.Tondeur, J-F. Portha, T. Cachot, L.Falk, O. Fudym, B. Ladevie), **Colloque du Programme Interdisciplinaire Energie du CNRS, Nantes, 16-18 novembre 2009.**
- C3. Communication par poster, avec acte. *Diabatic distillation microstructured: A theoretical feasibility study* (A. KANE, H.MONNIER, D.ALONSO, T.CACHOT, L. FALK)-**page 1-6** – **2nd European Process Intensification Conference (EPIC), Venise, Italie, Juin 2009.**

- C4. Communication par poster. *Microstructured distillation design: heat and mass transfer intensification* (A. KANE, H.MONNIER, T.CACHOT, L. FALK) - **2nd PhD Day ENVITAM University of Liege, Belgium, January 2008.**
- C5. Communication par poster. *Microstructured distillation design: heat and mass transfer intensification* (A. KANE, H.MONNIER, T.CACHOT, L. FALK) – **Séminaire de l'Ecole doctorale RP2E (Ressources Procédés Produits Environnement)-January 2008.**

Chapitre I : Analyse bibliographique

Introduction

Ce chapitre est dédié d'une part aux différents concepts qui gravitent autour de la distillation et d'autre part met en évidence, le potentiel de l'intensification des procédés par voie de miniaturisation qui de nos jours est la technique d'intensification qui connaît le plus fort développement.

Dans la continuité, et en ce qui concerne le champ d'étude de cette thèse, à savoir le développement des micro-procédés de séparation en général et de la micro-distillation en particulier, nous avons présenté les exemples de réalisations les plus récentes en micro-distillation.

Une analyse bibliographique sur l'hydrodynamique des films tombants a été réalisée. Nous présentons aussi les principales études qui ont été faites sur les transferts dans les films tombants ainsi que les modèles existants pour décrire les transferts de chaleur et de matière dans les films tombants.

1. Distillation

La distillation est une opération de séparation du génie chimique par laquelle on enrichit un mélange liquide de l'un de ses constituants par passage de l'état liquide à l'état vapeur. Lorsque le mélange n'est pas assez riche en le constituant recherché, la vapeur peut être condensée et revaporisée pour s'enrichir à nouveau et ceci plusieurs fois. La distillation est mise en pratique depuis près de 500 ans comme en témoigne le premier livre sur la distillation (*Liber de arte distillandi* : Le livre sur l'art de distiller) de Hieronymus Brunschwig, paru en 1512. Elle peut être réalisée soit de façon discontinue soit de façon continue. Dans ce dernier cas, en régime permanent, les débits d'alimentation, de distillat et de soutirat, la puissance de chauffe et toutes les caractéristiques de fonctionnement restent constants.

1.1 Equilibre liquide vapeur

Le principe de la distillation est basé sur la différence de volatilité des constituants du mélange à séparer. Le concept de volatilité relative (ou facteur d'enrichissement) est utilisé pour caractériser la facilité de séparation d'un mélange par distillation. La volatilité relative est définie par :

$$\alpha_{1/2} = \frac{y_1/x_1}{y_2/x_2} \quad \text{Equation I.1}$$

Avec : x_1 et x_2 : fractions molaires des constituants 1 et 2 dans la phase liquide

y_1 et y_2 : fractions molaires des composés 1 et 2 dans la phase vapeur

La séparation des mélanges ne cause pas de problème si la différence de volatilité des constituants ou la volatilité relative α est assez élevée ($\alpha > 1,2$).

Dans un mélange binaire non azéotropique (par exemple un système binaire n-propanol-éthanol), le constituant le plus volatil est celui dont la température d'ébullition est la plus basse à pression constante (qualifié de 'léger' ; éthanol, $T_{éb} = 78,3^\circ\text{C}$ à 1 atm) et le constituant le moins volatil est

celui dont la température d'ébullition est la plus élevée à pression constante (qualifié de 'lourd' ; propanol, $T_{éb}=97^{\circ}\text{C}$ à 1 atm).

En vaporisant partiellement un mélange de plusieurs constituants, la phase vapeur possède une composition différente de la phase liquide. Lorsque le mélange binaire est porté à ébullition, la vapeur produite s'est enrichie en composé le plus volatil. Il y eu lieu une séparation partielle des deux constituants par comparaison avec la solution initiale.

Par convention, pour un mélange binaire constitué des constituants 1 et 2, le constituant 1 est pris comme étant le composé le plus volatil (constituant clé), c'est à dire le composé ayant la température d'ébullition la plus basse. Le choix du constituant clé permet de définir les limites entre lesquelles s'effectue une séparation spécifiée.

Afin de décrire les équilibres liquide-vapeur pour les systèmes idéaux, les lois de Dalton et de Raoult sont couramment utilisées.

Un mélange de plusieurs corps purs est dit idéal lorsque :

- à l'état gazeux il a les propriétés d'un gaz parfait,
- à l'état liquide, il a les propriétés d'une solution idéale,
- ou à l'état diphasique liquide/vapeur, la vapeur a les propriétés d'un gaz parfait et le liquide celles d'une solution idéale.

Par définition, une solution est dite idéale lorsque l'activité de chacun de ses constituants est égale aux fractions molaires ou encore lorsque les coefficients d'activité sont égaux à l'unité quelles que soient les conditions de pression, de température et de composition.

Loi de Raoult :

La loi de Raoult permet de relier le titre d'un composé dans la phase liquide avec sa pression partielle dans la phase vapeur :

$$P_i = P_i^{\circ} \cdot x_i, \text{ avec } i=1, 2 \qquad \text{Equation I.2}$$

P_i correspond à la pression partielle du constituant i dans la phase vapeur,

P_i° représente la pression de vapeur saturante du constituant i , celle-ci peut être calculée en utilisant l'équation d'Antoine (Equation I.3), où A , B et C sont les paramètres de la loi d'Antoine spécifiques à chaque espèce :

$$P_i^\circ = \exp\left[A - \frac{B}{T + C}\right] \quad \text{Equation I.3}$$

Loi de Dalton

La phase vapeur suit la loi de Dalton. Elle permet de relier la composition d'un constituant dans la phase vapeur avec sa pression partielle.

$$y_i = \frac{P_i}{P} \quad \text{avec } i=1, 2 \quad \text{Equation I.4}$$

P est la pression totale.

Enfin le bilan matière permet d'écrire l'égalité des titres de chaque phase

$$x_1 + x_2 = 1 \quad \text{Equation I.5}$$

$$\text{et } y_1 + y_2 = 1 \quad \text{Equation I.6}$$

En combinant les lois de Dalton et de Raoult, il vient

$$K_i = \frac{y_i}{x_i} = \frac{P_i/P}{P_i^\circ} \quad \text{Equation I.7}$$

K_i est la constante d'équilibre d'un constituant, elle est définie comme étant le rapport entre la composition de la phase vapeur et celle de liquide.

On peut en déduire que :

$$K_1 = \frac{P_1^\circ}{P} \quad \text{Equation I.8}$$

$$\text{et } K_2 = \frac{P_2^\circ}{P} \quad \text{Equation I.9}$$

En distillation binaire, il est plus commun de travailler en volatilité relative qu'en constante d'équilibre car K_1 et K_2 dépendent grandement de la température. Toutefois puisque la dépendance en température est identique pour K_1 et K_2 , la volatilité relative ($\alpha_{1/2}$) est introduite car l'influence de la température sera plus faible :

$$\alpha_{1/2} = \frac{K_1}{K_2} = \frac{P_1^\circ}{P_2^\circ} \quad \text{Equation I.10}$$

Dans le cas d'un mélange binaire ayant une volatilité relative élevée (Figure I.1), la différence de température d'ébullition entre les constituants est suffisante pour permettre une bonne séparation des constituants du mélange initial (l'écart entre la courbe de rosée et la courbe de bulle est grand), peu de plateaux théoriques sont nécessaires pour une séparation efficace des constituants. Le plateau théorique est le plateau idéal où les pertes de chaleur sont nulles et les équilibres thermodynamiques instantanés.

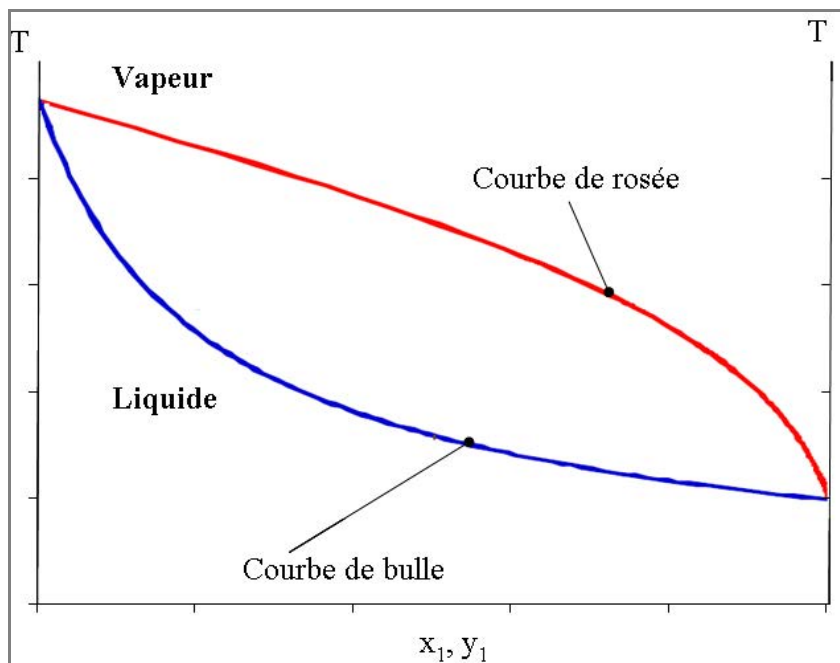


Figure I. 1: Diagramme fictif température-composition d'un mélange idéal (volatilité relative élevée)

Pour une séparation totale d'un mélange binaire, un seul équilibre liquide/vapeur ne suffit pas. Il est primordial de réitérer l'opération avec la vapeur produite puis condensée afin de tendre vers une séparation totale.

La succession de plusieurs équilibres conduit à avoir à la fin du processus, une phase vapeur et/ou une phase liquide qui n'est pas en équilibre liquide/vapeur avec le liquide ou avec la vapeur (Fonyo et Fabry, 1998). Cette succession d'équilibres est permise grâce au procédé de distillation au sein de laquelle le contact entre phases est assuré par des plateaux ou du garnissage.

1.2 Distillation de mélanges binaires

La distillation, qu'elle soit "batch" ou continue s'effectue dans une colonne de séparation des phases. Une colonne de distillation est constituée d'une enveloppe cylindrique verticale qui renferme les dispositifs (plateaux ou garnissages) permettant d'assurer un bon contact entre les phases. Il s'agit de faciliter les transferts de matière et de chaleur entre les phases liquide et vapeur qui traverse la colonne à contre-courant. En effet, le liquide se déplace dans la colonne par gravité de haut en bas et la vapeur se déplace de bas en haut.

Dans le cas de la distillation continue, le mélange à distiller est introduit dans la colonne à un niveau déterminé de façon à obtenir au mieux la séparation désirée. Le liquide arrivant en fond de colonne est partiellement vaporisé dans le bouilleur qui crée la phase vapeur nécessaire à la distillation, le liquide ruisselant entre les plateaux est partiellement vaporisé le long de la colonne (cf. Figure I.2).

Le liquide non évaporé est extrait en fond de colonne et constitue le résidu (ou soutirat).

La vapeur arrivant en tête de colonne est condensée dans le condenseur. Une partie des condensats est renvoyée en tête de colonne et constitue la phase liquide dans la partie supérieure de la colonne, c'est le reflux. Le reste est soutiré et constitue le distillat.

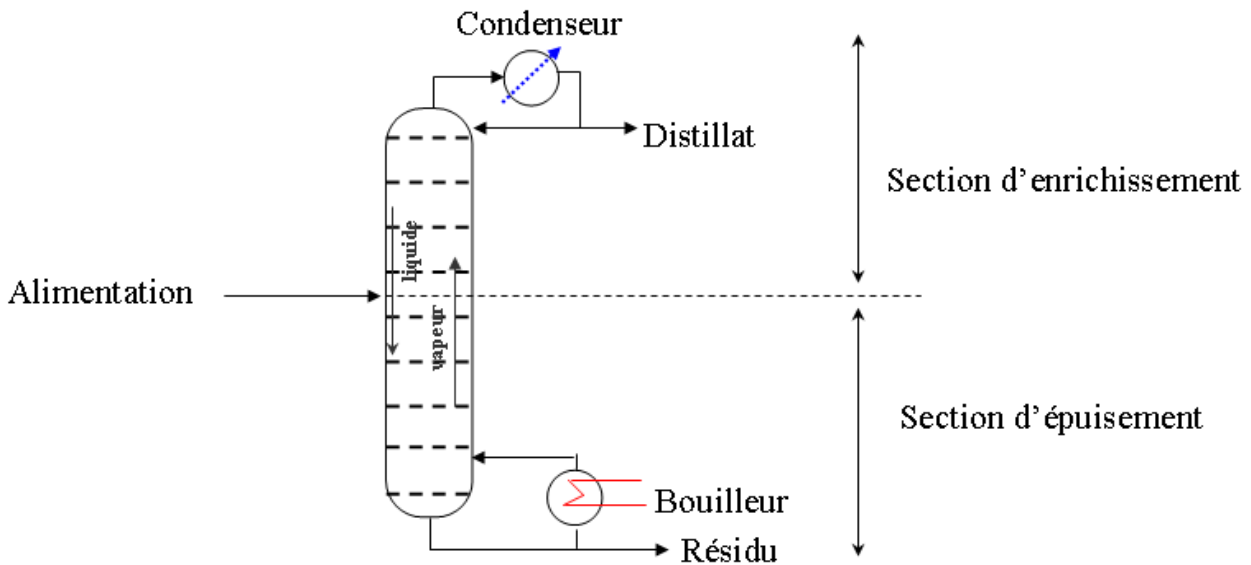


Figure I. 2: Schéma d'une colonne de distillation binaire

La partie au dessus de l'alimentation forme la zone d'enrichissement, puisque dans cette section la vapeur s'enrichit en constituant le plus léger.

La partie en dessous de l'alimentation forme la zone d'épuisement (ou d'appauvrissement). Le liquide soutiré dans cette section s'appauvrit en constituant le plus léger.

Le mélange binaire est introduit au plateau d'alimentation, le constituant le plus léger est récupéré en tête de la colonne et le constituant le plus lourd (riche en composé le moins volatil) en bas de la colonne.

La séparation d'un mélange binaire peut être représentée graphiquement, par exemple, par la méthode de McCabe-Thiele (*McCabe, 1925*). Il permet d'évaluer le nombre de "plateaux théoriques" nécessaire pour une séparation souhaitée. Cette méthode suppose que les constituants du mélange ont des enthalpies molaires de vaporisation semblables, que la colonne est adiabatique et que la condensation des vapeurs de tête de colonne est totale.

Cependant, la méthode de McCabe et Thiele n'est pas la seule méthode pour déterminer le nombre d'étages théoriques. Il existe d'autres méthodes comme celle de Ponchon Savarit (*Ponchon, 1921*) ou bien la méthode de Fenske (*Fenske, 1932*).

Quand les constituants du mélange ont des volatilités relatives faibles ($\alpha < 1,2$) ou très faibles ($1 < \alpha < 1,05$), les courbes de rosée et de bulle sont proches (Figure I.3), dans ce cas, la séparation devient difficile parce que la force motrice de la distillation ($x_i - y_i$) est très faible, autrement dit, il faut un grand nombre de plateaux et/ou un taux de reflux élevé pour réaliser la séparation désirée. Ce taux de reflux est défini comme étant le rapport volumique entre le condensat réinjecté dans la colonne (reflux) et le liquide pur soutiré au condenseur (distillat). Il constitue un critère important dans la définition des conditions opératoires.

De même, un système binaire présentant un pincement entre la courbe de bulle et de rosée (Figure I.4) occasionnerait les mêmes contraintes de séparation. L'équipement et les coûts d'utilités au bouilleur et au condenseur augmentent nettement dans ces conditions du fait du nombre important de plateaux nécessaires pour réaliser la séparation souhaitée.

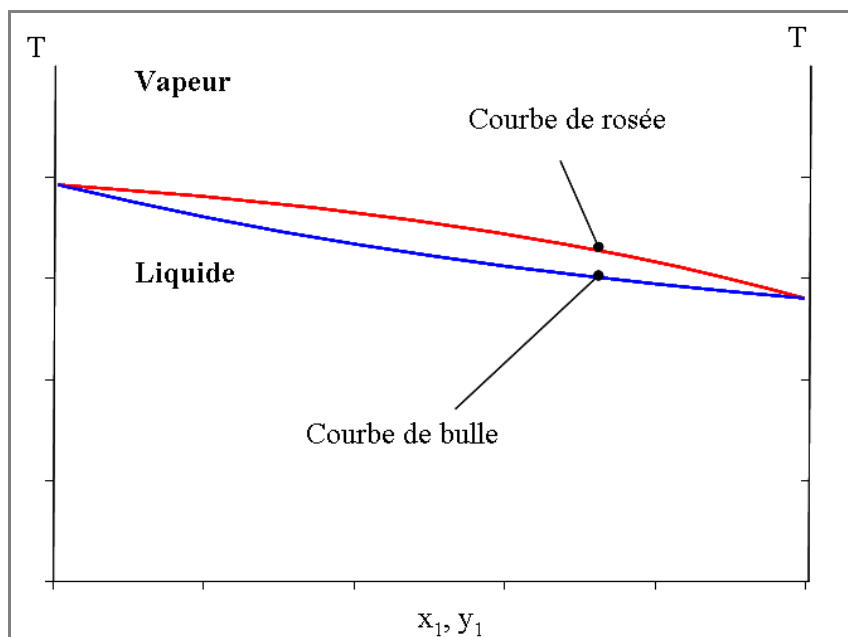


Figure I. 3: Diagramme fictif, température-composition d'un mélange de volatilité relative faible, avec des températures d'ébullition voisines (exemple : binaire acétate d'éthyle / trichloro éthyle)

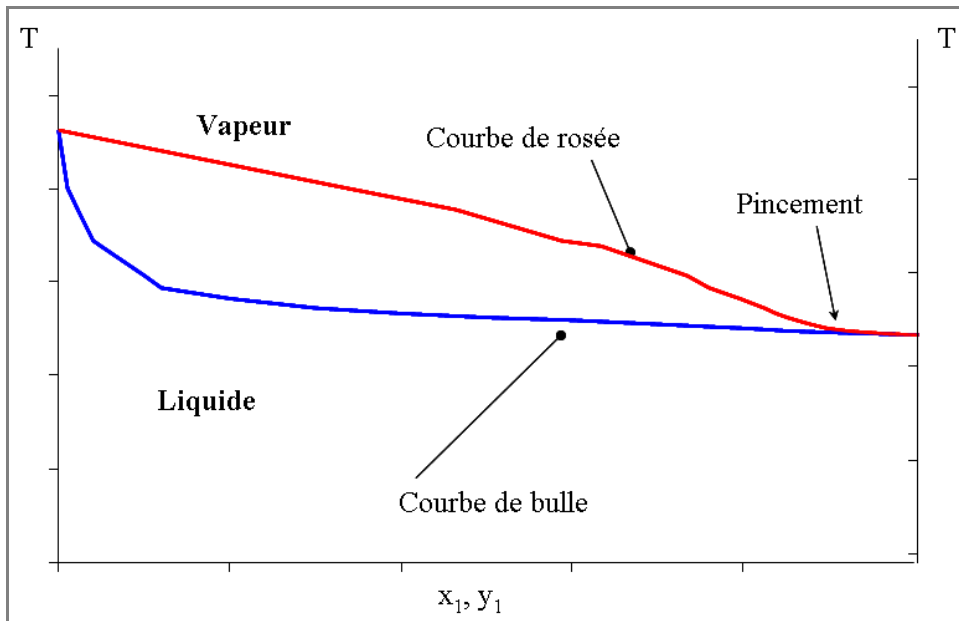


Figure I. 4: Diagramme fictif, température-composition d'un mélange de volatilité relative faible, avec pincement (exemple : binaire eau/acétone)

Du point de vue énergétique, une colonne de distillation conventionnelle peut être assimilée à une machine ditherme recevant une quantité d'énergie au bouilleur et cédant une partie de cette même énergie au niveau du condenseur. Bien que ce processus permette d'effectuer la séparation souhaitée, celle-ci est tout de même soumise aux irréversibilités thermodynamiques se traduisant par une production d'entropie, laquelle contribue fortement à la réduction du rendement énergétique de la colonne Rivero (1993), Cachot (1992).

2. Intensification de la distillation

La distillation rencontrée dans le milieu industriel, dite classique, est supposée adiabatique. Dit autrement, le flux énergétique apporté au bouilleur, en bas de la colonne est égal au flux récupéré en haut de colonne au condenseur.

Cette étude trouve son intérêt dans la fréquence de l'utilisation de la distillation. En effet, la distillation est la principale opération unitaire utilisée industriellement pour la purification des mélanges. Les domaines sont variés : raffinerie, chimie, pétrochimie, biochimie, en fonctionnement *batch* ou continu avec ou sans réaction chimique. Cependant, la génération de la phase vapeur nécessite un apport énergétique. Une quantité qui est parfois importante et qui dépend de la nature des constituants, de leur quantité, des conditions thermodynamiques, de l'environnement et qui de nos jours peut être difficile à supporter par les entreprises. Car en effet, la distillation est « énergivore ». Prenons l'exemple des raffineries de pétrole, où l'énergie utilisée pour la séparation des différentes coupes souhaitées, représente à peu près 30% de

l'énergie totale utilisée par la raffinerie elle même. Pourtant comme nous venons de le souligner, l'énergie apportée au bouilleur est quasiment récupérée au condenseur. Et puis l'apport énergétique nécessaire qui correspond à la différence d'enthalpie libre de Gibbs entre l'état final souhaité et l'état initial ne peut à elle seule être l'unique raison de cette importante consommation énergétique (Equation I 11). De manière générale, le besoin énergétique n'est jamais moins de cinq à dix fois l'énergie de Gibbs (Cachot, 1992).

$$dG = VdP - SdT + \sum_{i=1}^j \mu_i dn_i \quad \text{Equation I 11}$$

avec μ_i , le potentiel chimique du composant i de fraction molaire x_i en solution à T et P .

$$\mu_i(T, P) = \mu_i^0(T) + RT \ln x_i \quad \text{Equation I 12}$$

et dn_i , la variation du nombre de moles entre l'état initial et l'état final.

Dans le cas, qui est le notre, où la température et la pression de l'état initial et final sont les mêmes, l'énergie de Gibbs devient :

$$dG = \sum_{i=1}^j \mu_i dn_i \quad \text{Equation I 13}$$

En réalité si l'énergie se conserve, elle voit son niveau de température diminuer entre le bouilleur et le condenseur. La distillation est l'une des opérations de séparation les plus complexes car elle fait intervenir les trois phénomènes de transport que sont le transfert de chaleur, le transfert de matière et le transfert de la quantité de mouvement (Bird et *al.* 1960), le plus souvent couplés entre eux. Or ces transports demandent des différences de potentiel qui accentuent la création d'entropie et ainsi diminuent le **rendement énergétique** du procédé.

2.1 Des transports nécessaires

Le transfert de la chaleur est nécessaire pour vaporiser une partie du liquide et pour, inversement, condenser partiellement la vapeur. Il a lieu entre la source de chaleur et les phases mais aussi entre les phases. Lors des changements d'état, la vapeur générée s'enrichit en constituant le plus volatil alors que le liquide s'en appauvrit. Un transfert de matière a donc lieu entre les deux phases grâce à ces changements d'état mais aussi parce les concentrations des constituants y sont différentes. Enfin, il faut séparer les deux phases, vapeur et liquide, afin de parfaire la séparation. Pour cela les contacteurs utilisent le plus souvent la force de gravité pour le liquide et la convection naturelle pour la vapeur. Aussi, des pertes de charges sont parfois nécessaires au sein des phases pour augmenter les transferts de masse et de chaleur.

En résumé, la distillation est un processus complexe qui ne peut pas se produire si le système (le distillateur) est en équilibre thermodynamique avec l'environnement. Ainsi malgré une thermodynamique qui nous enseigne que la séparation correspond à une diminution d'entropie et que la variation de l'énergie libre conduit à une valeur minimale de l'énergie utile pour la séparation (Cachot, 1992), la séparation de corps nécessite un apport d'énergie supplémentaire indispensable aux transferts irréversibles.

2.2. Irréversibilités thermodynamiques

Le procédé ayant le meilleur rendement énergétique est celui qui crée le moins d'entropie, c'est à dire celui qui se rapproche le plus de la réversibilité thermodynamique (Cachot, 1992). Cela signifie qu'il faut travailler au voisinage de l'équilibre thermodynamique. Or une différence de température est nécessaire pour obtenir un transfert thermique afin de vaporiser le liquide. De la même façon, le transfert de matière des différents constituants entre les deux phases demande que les concentrations soient différentes. Enfin, la séparation des phases, indispensables à la séparation ne peut se produire sans transfert de quantité de mouvement. L'irréversibilité est indispensable. Mais elle peut être contrôlée, optimisée [Tondeur (2006), Tech. Ing. « Optimisation thermodynamique BE 8017 – BE 8018 »]. Pour cela il faut d'une part les dénombrer et d'autre part utiliser un concept pour évaluer leur impact sur la surconsommation énergétique du procédé. Ce peut être l'entropie où il s'agira de diminuer sa création, l'exergie qui est plus considéré comme un « outil » par les thermodynamiciens ou encore **la puissance de séparation** (Sorin et Rheault, 2007) utilisée pour exprimer les dégradations énergétique dans les procédés de séparation.

2.3. L'exergie

Dans tout processus de transformation l'énergie se conserve. Cependant elle est dégradée lors des différents transferts. On dit que sa qualité diminue. Pour caractériser cette qualité, une fonction mathématique est définie : l'exergie, notée Ex qui a l'unité de l'énergie. Au cours des différentes transformations, l'exergie est détruite, consommée (Rivero Rodriguez, 1993). Elle décroît donc entre l'état initial et l'état final.

Par ailleurs, dans une colonne à distiller dite adiabatique, la séparation nécessite un apport de **chaleur** au bouilleur et un retrait au condenseur. On dit que l'opération convertit de l'exergie

« thermique » en exergie « chimique ». Cette conversion n'est pas totale car il s'agit d'une source de chaleur (Rivero Rodriguez, 1993). Elle admet un rendement, le rendement de Carnot :

$$Ex = Q \left(1 + \frac{T_0}{T} \right) \quad \text{Equation I 14}$$

avec T_0 la température de l'environnement et T la température de la source de chaleur.

Ainsi l'intégralité de l'énergie « thermique » apportée ne peut être utilisée. L'exergie thermique correspond à l'énergie réellement disponible. De plus l'exergie nécessaire à la séparation des constituants n'est qu'une partie de l'exergie thermique. Il s'agit de l'exergie compositionnelle. Elle s'exprime à partir de l'énergie de Gibbs à T et P constant (Equation I 13) mais en prenant comme température de référence pour le potentiel chimique (Equation I 12), la température de l'environnement, T_0 :

$$Ex = RT_0 \sum_i^j x_i \ln x_i \quad \text{Equation I 15}$$

Pour conclure, si l'énergie de Gibbs est nécessaire pour la séparation des phases, elle n'est pas suffisante. Le rendement de Carnot (Equation I. 14) qui tient compte des irréversibilités, nous oblige à apporter plus d'énergie au système.

2.4. La puissance de séparation

Le critère de puissance de séparation représente la variation de l'exergie compositionnelle entre les courants de matière en entrée et en sortie du contacteur en tenant compte des différents flux de matière. Elle correspond à l'exergie réellement utilisée pour la séparation (Equation I 16).

$$P_{\text{sep.}} = RT_0 \sum_i^j F_i x_i \ln x_i \quad \text{Equation I 16}$$

Dans le cas d'une distillation continue réversible :

$$P_{\text{sep.}} = RT_0 [(Dx_D \ln x_D + Sx_S \ln x_S) - Ax_A \ln x_A] \quad \text{Equation I 17}$$

Avec A , D et S les débits respectifs de l'alimentation, du distillat et du soutirat.

La puissance de séparation est parfois appelée exergie de séparation. Elle permet de déterminer les conditions opératoires (T , P , flux de chaleur et de matière) optimales pour une séparation donnée.

Nous n'allons pas utiliser le concept d'exergie dans cette thèse pour optimiser le procédé étudié en minimisant les dégradations énergétiques. Il s'agit ici de définir une efficacité de séparation qui tient compte à la fois de la qualité de la séparation et de la quantité de produit obtenu. La puissance de séparation est une efficacité qui tient compte de ces objectifs de séparation. Cependant, il n'est pas possible de ne pas s'intéresser à l'influence des grandeurs thermodynamique (flux de chaleur, températures) sur la séparation. C'est la raison pour laquelle les travaux menés par Rivero Rodriguez en 1993 et Cachot en 1992 sur la **distillation diabatique** nous ont été d'une grande utilité pour développer un nouveau procédé de distillation.

2.5. La distillation diabatique

Il est démontré que dans de nombreux procédés de transformation de la matière, les dégradations entropiques (et les consommations énergétiques qui en découlent) peuvent être minimisées en répartissant les flux d'énergies dans le volume plutôt qu'aux bornes du système (Rivero 1993). Cependant, la réalisation et la gestion de profils thermiques contrôlés (gradients thermiques, étagements maîtrisés des températures) ne sont pas très souvent réalisées dans les dispositifs conventionnels parce que complexes et coûteuses (batterie d'échangeurs, gestion des fluides...).

La théorie de l'équipartition de la production d'entropie énoncée par Tondeur (1987) stipule que la production d'entropie totale est minimale lorsqu'elle est uniformément distribuée dans le système. Cette distribution optimale de l'entropie créée peut donc conduire à une conception économiquement optimale. Ainsi, répartir les irréversibilités dans un système a un intérêt réel, toutefois réduire leur ampleur n'est pas forcément nécessaire. Le concept permettant de minimiser la création d'entropie tout en maximisant le rendement exergetique (Riollet, Tech. Ing. B1212) dans une colonne à distiller est connu sous le nom de distillation diabatique ou réversible (Cachot, 1992). Du point de vue technique, elle consiste à remplacer le bouilleur et le condenseur de la distillation adiabatique conventionnelle (Figure I.5) par des échangeurs intégrés au sein de la colonne (Figure I.6). La distillation diabatique permet de rationaliser la consommation énergétique en utilisant une énergie à un niveau thermique plus proche du mélange à séparer. L'objectif principal étant de minimiser la production totale d'entropie dans la colonne en cherchant les valeurs optimales des quantités de chaleur transférées sur chaque étage. Ceci

aboutit à une augmentation du nombre de plateaux théoriques (et *a priori* de la hauteur du contacteur), à l'augmentation de la surface d'échange de chaleur et à une complexification dans la mise en œuvre du dispositif.

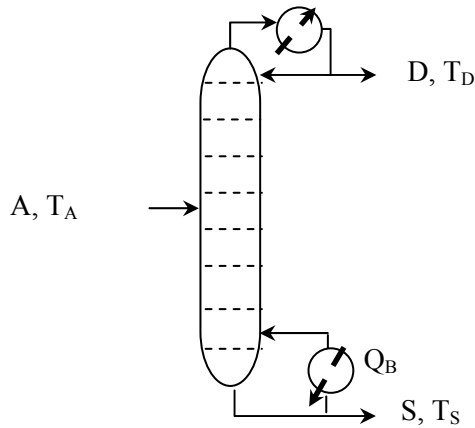


Figure I. 5 Colonne adiabatique

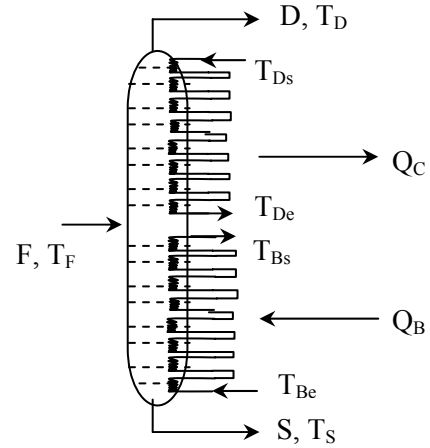


Figure I. 6 Colonne diabatique

La répartition de la chaleur le long des étages implique un rapprochement des compositions de la vapeur et du liquide de façon à diminuer les irréversibilités. Ceci peut être illustré dans le diagramme de McCabe et Thiele (Figure I.7) où l'on a représenté, outre la courbe d'équilibre liquide-vapeur, le couple de droites opératoires classiques de la colonne adiabatique, ainsi que la courbe opératoire du cas diabatique.

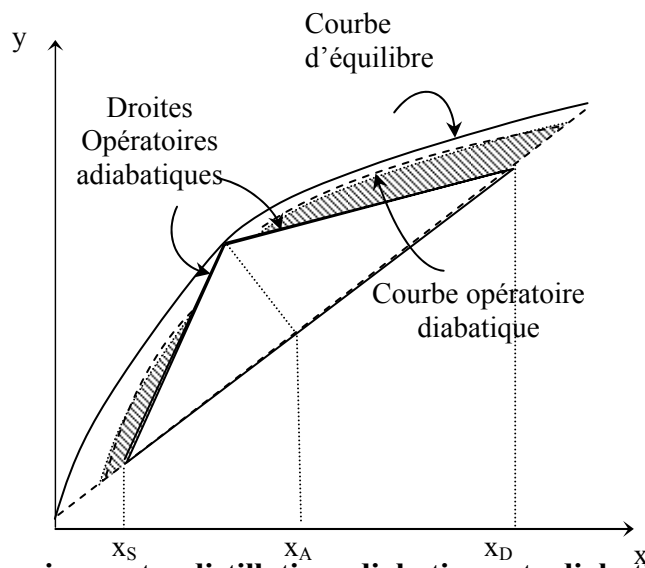


Figure I. 7 Comparaison entre distillations diabatique et adiabatique suivant la méthode de McCabe et Thiele (Rivero, 1993)

Suivant la configuration diabatique, il est possible avec la distribution optimale de la quantité de chaleur utile à la séparation, d'ajuster les rapports de phases liquide et vapeur (L/V), ceci modifie l'allure des courbes opératoires dans le diagramme de McCabe et Thiele (Figure I.7), les forces motrices de séparation sont distribuées tout au long de la colonne.

On observe qualitativement que l'écart entre la courbe opératoire diabatique et la courbe d'équilibre est beaucoup plus uniformément réparti. Le résultat global se traduit finalement en une économie de vapeur (section d'épuisement) et d'eau de condensation (section d'enrichissement).

Sur la figure I.7, la zone rayée comprise entre les droites opératoires adiabatique et la courbe opératoire diabatique est proportionnelle à la quantité d'exergie compositionnelle économisée dans la configuration diabatique, cette dernière permet alors de maximiser le rendement exergétique.

Le résultat de la disposition diabatique est de rendre la colonne globalement plus proche de la réversibilité.

L'enjeu énergétique se situe donc principalement sur :

- la réduction des irréversibilités lors de la séparation,

- la diminution de moitié de la consommation des fluides frigoporteur et caloporteur, ce qui se traduit concrètement en une économie sur les consommations de fluides-vecteurs d'énergie thermique,
- l'utilisation plus rationnelle de l'énergie car du fait de l'augmentation du niveau énergétique du fluide frigoporteur, celui-ci pourra trouver une autre utilisation dans le procédé (intégration thermique).

Depuis l'avènement du concept de distillation diabatique, des études détaillées ont été effectuées [(Rivero (1993), Cachot (1992))] suivies de quelques réalisations industrielles sans suite. Ceci étant principalement dû à la complexité de sa mise en œuvre et entre autres au grand nombre d'échangeurs nécessaires à son bon fonctionnement.

Toujours dans le souci de rationaliser la consommation énergétique dans les procédés de séparation, grâce au développement considérable des technologies micro-structurées, il est actuellement possible de réaliser des appareils qui se caractérisent par un rapport surface sur volume extrêmement important. Par conséquent, l'apport ou l'évacuation de la chaleur ainsi que le transfert de matière au cœur du procédé de distillation peuvent se faire de manière extrêmement rapide et efficace. La section qui suivra montre comment par la micro-structuration des supports, les transferts de chaleur et de matière peuvent être intensifiés tout en réduisant les niveaux d'énergies nécessaires pour mener à bien une séparation.

3. Intensification des procédés

3.1 Historique et définition de l'intensification des procédés

L'intensification des procédés consiste à développer de nouveaux appareils et techniques qui, comparés aux procédés conventionnels, offrent des améliorations drastiques telles que [Moulijn, 2008] :

- la réduction de la taille des équipements,
- la diminution de la consommation d'énergie et de matières premières,
- la génération de moins de déchets, conduisant ainsi à des technologies moins coûteuses, plus sûres et plus durables.

Les premiers travaux sur l'intensification des procédés dans le monde industriel remontent à la fin des années 1970, lorsque l'ICI² a en premier mis en avant que le concept d'intensification est un moyen efficace permettant la réduction du coût en capital d'un système de production en développant la technologie HiGee³ permettant de séparer des mélanges en les soumettant à une force centrifuge, ce qui a permis d'intensifier les transferts tout en permettant de concentrer l'équivalent d'un grand nombre d'étages théoriques dans un petit volume.

Une application à très grande échelle de cette technologie a permis de remplacer des colonnes de séparation de 30 mètres de haut travaillant sous vide par des appareils rotatifs de 1,5 mètre de diamètre pour une même séparation. Cependant l'ordre de grandeur de cette réduction spectaculaire a suscité beaucoup de questions chez les spécialistes de la distillation; l'un des pionniers de l'intensification des procédés, Ramshaw (1995), annonçait des facteurs de réduction de 100 fois ou plus. D'après Stankiewicz et Moulijn (2000), un facteur deux est considéré comme entrant dans le cadre de l'intensification des procédés.

L'accident industriel de l'usine Union Carbide à Bhopal (Inde) survenu la nuit du 3 décembre 1984 et répertorié aujourd'hui comme étant la plus importante catastrophe industrielle à ce jour (entre 20000 et 25000 pertes humaines selon les associations de victimes) a éveillé les consciences en mettant l'accent sur la nécessité de réduire les facteurs de risques en évitant la manipulation massive de produits intermédiaires dangereux, et en réduisant l'échelle des appareils aux points critiques du procédé (pression, température, toxicité des produits).

² ICI : Imperial Chemical Industries, société britannique d'industries chimiques.

³ La technologie HIGEE (acronyme anglais de "high gravity") est parmi les premiers appareils classés comme relevant du concept d'intensification. Ce concept a été initié par Ramshaw (1995) de l'ICI (Imperial Chemical Industries, société britannique d'industries chimiques).

De nos jours, en plus d'être l'une des plus grandes tendances du génie des procédés, l'intensification des procédés est aussi incontestablement une préoccupation sociétale et environnementale.

L'intensification découle donc d'un besoin essentiel d'évolution du génie des procédés, particulièrement dans le contexte actuel de la mondialisation des échanges, d'une concurrence accrue et d'un réel souci lié au développement durable (Charpentier 2007, 2008). Il faut alors des procédés pouvant répondre à la fois aux exigences, à la perpétuelle augmentation du marché et au besoin sociétal de préservation des ressources.

L'idée de base de l'intensification des procédés ouvre donc la voie à de nombreuses et très diverses applications. Stankiewicz et Moulijn (2000) les classent selon deux axes : les méthodes et les équipements, ces derniers sont détaillés sur l'organigramme de la Figure I.8.

- **Les méthodes (software)** relevant de l'intensification des procédés représentent un champ d'étude beaucoup plus vaste, regroupant les réacteurs multifonctionnels (distillation réactive), les séparations hybrides (distillation membranaire...), les sources d'énergies alternatives (micro-ondes) ou diverses méthodes de mesure et de contrôle.

L'utilisation des procédés hybrides et plus particulièrement les réacteurs multifonctionnels (Figure. I.9) mettent en œuvre le plus souvent dans un même appareil, les étapes de réaction suivie de la séparation des produits.

Outre l'économie significative des coûts de fonctionnement et la réduction de la taille des installations, ces procédés présentent un avantage majeur qui consiste à surmonter les limitations de l'équilibre thermodynamique en séparant les produits de la réaction au fur et à mesure de leur formation.

- **Les équipements (hardware)** : Une autre méthode d'intensification des procédés consiste à effectuer la structuration des procédés, en adaptant par exemple les dimensions géométriques du

système aux temps caractéristiques des processus limitants. Les microréacteurs et les micro-contacteurs sont aujourd’hui les exemples les plus connus de cette voie d’intensification.

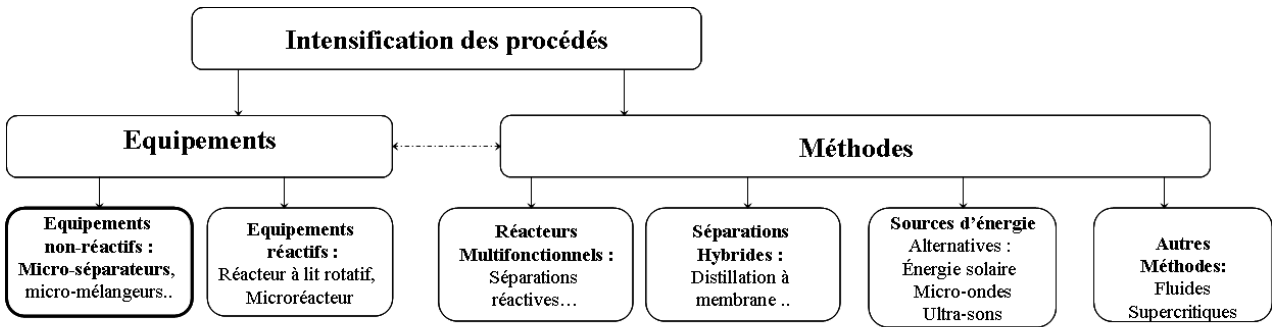


Figure I. 8 : Intensification des procédés et ses composantes : Classification selon Stankiewicz et Moulijn (2000) suivant les méthodes et les équipements

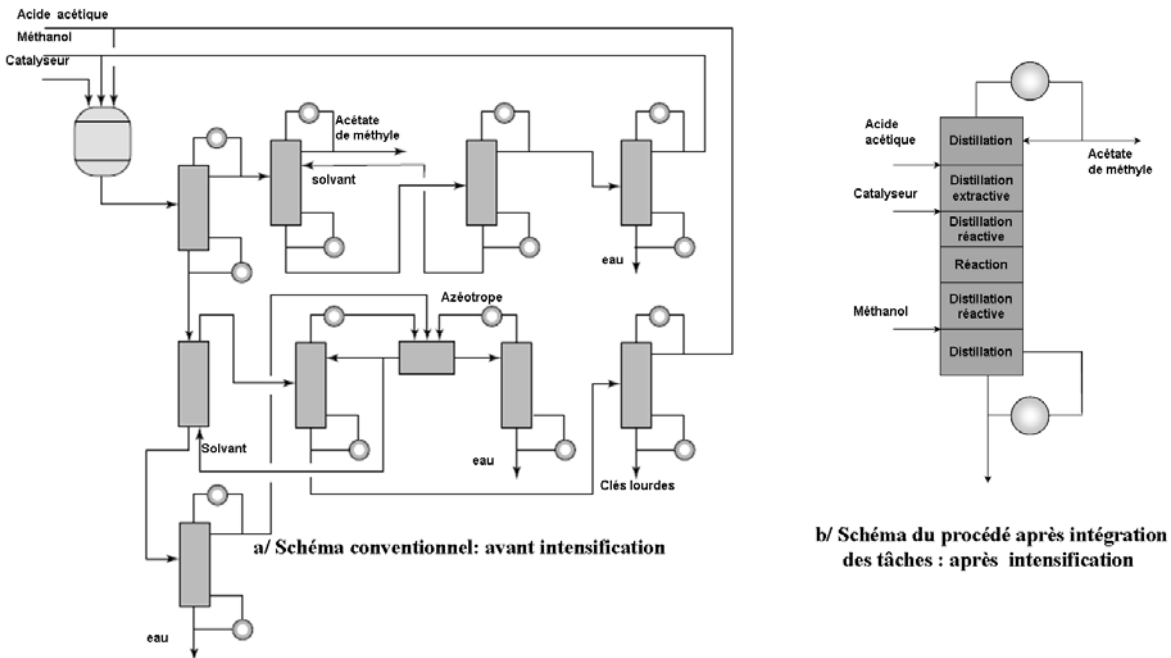


Figure I. 9: Production d’acétate de méthyle : (développé par Eastman Chemical Inc.)

La présentation de ces équipements et de ces méthodes ne se veut pas exhaustive, mais elle permet de souligner le champ d’action considérable couvert par l’intensification des procédés. La Figure I.10 met en évidence l’intérêt de l’intensification sur l’occupation rationnelle de l’espace et de son influence positive sur l’environnement.

La substitution d’un procédé classique par un procédé intensifié n’est toutefois pas chose facile, car comme il sera exposé dans les parties suivantes, une importante somme de connaissances est

souvent nécessaire dans le cas particulier de l'intensification par voie de micro-structuration des procédés.

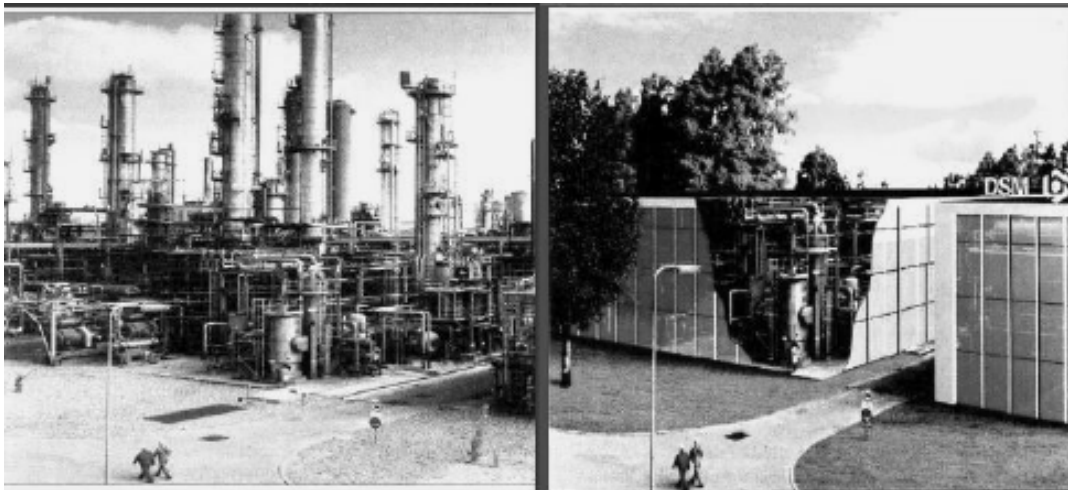


Figure I. 10 Représentation imagée de l'usine du futur : (DSM Inc)

3.2 Intensification par le biais des « équipements »: Les micro-procédés

Dans un procédé macroscopique à l'image d'une colonne de distillation conventionnelle et de la plupart des procédés de séparations classiques, l'orientation verticale fait que la gravité est dominante par rapport aux effets de mouillabilité des supports, de tensions de surfaces ou de forces capillaires.

Pour les procédés miniaturisés (avec micro-canaux, micropores...), les forces capillaires jouent un rôle déterminant dans les processus de transferts tandis que l'effet de la gravité y est négligeable.

Du point de vue technologique et au vu de la quantité d'expériences emmagasinées au fil des années par le monde de la recherche et des industries chimiques, il paraît évident que les macro-procédés de séparations sont très matures en ce sens que ce sont des technologies bien cernées tant dans la science de conception que dans les procédures.

Toutefois, ces procédés de séparations consomment beaucoup d'énergie, les coûts de fabrication et d'entretien sont élevés, et ces équipements ont aussi l'inconvénient d'être volumineux, occupant ainsi beaucoup d'espace dans les usines.

Par exemple, la distillation de mélanges à faibles volatilités relatives ou de mélanges azéotropiques demandent beaucoup d'énergie. D'ailleurs, aux Etats Unis, l'énergie consommée par les procédés de distillation est proche des 3% de la consommation totale en énergie du pays. En 1998, on comptait environ 40 000 colonnes à distiller dans ce pays (Stichlmair, 1998). Sur l'énergie totale consommée dans le processus de raffinage du pétrole, les deux-tiers sont associées à la distillation des fractions légères et lourdes. Ceci montre bien la préoccupation des industriels à diminuer cette consommation et à se tourner vers de nouveaux concepts innovants, sûrs, respectant l'environnement tout assurant de meilleures rendements.

Le monde industriel a pris conscience que les concepts innovants d'intensification des procédés servent à augmenter l'efficacité énergétique et en ressources, ce qui mène naturellement à une fabrication de substances de meilleur marché pour la chimie lourde et fine, plus écologique ainsi qu'à de nouveaux produits à haute valeur ajoutée.

3.2.1 Intérêts des micro-procédés

Les procédés miniaturisés sont caractérisés par des surfaces fonctionnelles structurées importantes et des volumes opérationnels faibles, ce qui leur confère un grand rapport surface/volume permettant ainsi de favoriser d'une manière significative les mélanges et les transferts de chaleur et/ou de matière. Ces procédés permettent par exemple, la production à la demande et sur site de substances intermédiaires présentant un danger potentiel lors de leur stockage ou de leur transport.

Les microréacteurs sont également utilisés pour les faibles temps caractéristiques qu'ils présentent. En effet, la manipulation de faibles quantités de fluide dans des petites géométries structurées permet un temps de mélange très court.

Il est plus facile de piloter le temps de contact entre les réactifs dans un micro-procédé que dans une macro-échelle. Cette propriété particulière des micro-procédés permet par exemple un

meilleur contrôle de la température ou encore, d'augmenter la sélectivité de nombreuses réactions, lorsque des sous-produits apparaissent via des mécanismes de réactions consécutives-compétitives.

Au vu du potentiel et des possibilités qu'offrent ces procédés innovants, les microréacteurs ont vu le jour. Ces procédés innovants permettent outre l'amélioration des rendements, d'avoir la capacité d'évacuer la chaleur, ce qui ouvre de nouvelles voies de synthèse directes avec des réactions qui pour des raisons de sécurité étaient jusque là dangereuses à réaliser à l'échelle macroscopique.

De nos jours, un certain nombre d'opérations mettant en œuvre des réactions sont effectuées en discontinu (en cuve agitée). Dans certains cas, le temps nécessaire à la réaction est beaucoup plus long que la cinétique même des réactions mises en jeu à cause des processus de transferts de matière et de chaleur très lents. La principale cause étant que ces dispositifs disposent de faibles aires spécifiques.

En remplaçant ce type d'équipements par un microréacteur, on peut aboutir grâce aux transferts rapides et intensifiés, à des temps de réactions plus rapides tout en augmentant le taux de conversion et parfois la sélectivité. Des réactions hautement exothermiques comme la fluoration directe des composés aromatique Jähnisch (2000), Obein (2006) ont pu être réalisées avec succès dans des microréacteurs.

La miniaturisation des procédés de séparation n'a pas évolué avec la même rapidité que celle des microréacteurs. La plupart des études effectuées sont limités à des réactions à une ou plusieurs étapes qui ne mettent pas en œuvre des procédés de séparations intermédiaires.

3.2.2 Contraintes des micro- procédés

Dans un micro-procédé de distillation où de la chaleur est acheminée, la grande conductivité thermique du matériau (métal le plus souvent) peut induire une homogénéité thermique du

système au détriment de la gestion des gradients thermiques indispensable à une séparation efficace des constituants.

Afin de stabiliser des films liquides très minces, des garnissages ou des plaques micro-structurés sont fabriqués. L'aire interfaciale et l'efficacité de transfert de matière entre les deux phases (liquide et vapeur) sont alors augmentées par rapport à un support classique.

A travers le peu de travaux publiés et du peu de brevets déposés (Hessel, 2008), les procédés de séparations miniaturisés sont toujours en marge dans les thèmes de recherche en micro-procédés. Depuis une dizaine d'années, il n'y a que quelques micro-procédés de séparation qui ont connu un fort développement, parmi lesquels on peut citer : les séparations membranaires [(Wan (2001), Holladay (2002), Gielens (2004), Smitha (2005))], l'extraction liquide/liquide [(Turner (2000), Benz (2001), Löb (2006))] ou encore plus récemment la distillation de mélanges binaires [Sowata (2003), Tonkovich (2008), Wootton (2004), Sunberg (2008), Hartman (2009)].

Les principales contraintes des micro-procédés sont principalement relatives à leur compacité, ce qui peut conduire à des phénomènes de bouchage et d'encrassement, ceci limite la durée de vie de ces technologies.

La compacité des équipements peut aussi présenter d'autres inconvénients majeurs : La force motrice de gravité risque d'être très faible, ce qui fait que selon l'orientation de l'écoulement ou de l'équipement (verticale ou horizontale), l'influence des forces mises en jeu à savoir, la gravité, les tensions de surface et les forces capillaires ne seront pas les mêmes.

Il est bien connu, que réaliser une opération de distillation dans un système micro-fluidique est une chose difficile puisque les forces capillaires prédominent sur les forces de gravité. Ainsi de nouveaux processus et régimes apparaissent dans ce genre de micro-procédés et peuvent être plus

complexes par rapport aux procédés conventionnels dans lesquels ces mêmes phénomènes peuvent être négligés.

En effet, vu les très faibles dimensions caractéristiques des canaux dans lesquels circule le liquide, des appareils micro-structurés (50-300 μm), l'hydrodynamique ainsi que les paramètres physico-chimiques liés aux phénomènes de transfert et de transport sont gouvernés par des effets surfaciques au lieu des effets volumiques dominants dans les procédés conventionnels.

Outre les inconvénients inhérents à la technologie, il faut noter que malgré toutes ces avancées technologiques en miniaturisation et en intensification des procédés, réduire les échelles n'est toujours pas un acte naturel chez un ingénieur en procédés.

L'intégration des appareils micro-structurés et leur acceptation dans le monde industriel ne fait toujours pas l'unanimité.

C'est pourquoi, il est aujourd'hui indispensable, afin de faciliter l'intégration des micro-procédés dans les usines, de proposer des outils de démonstration sur lesquels les industriels peuvent concrètement vérifier la faisabilité de leurs projets.

4. Micro-distillation : Etat de l'art et exemples de réalisations

Du fait de la compacité des équipements (espace confiné, tailles millimétriques voir submillimétriques des micro-canaux...), étudier la distillation dans des petites échelles amène à repenser la distillation à cause des difficultés auxquelles on va se confronter : ébullition dans les micro-canaux, coexistence des phases liquide et vapeur, apparition de zones sèches.

Dans une étude récente faisant état de l'intérêt affiché de la communauté scientifique dans les technologies micro-structurées, Hessel *et al.* (2008) ont passé en revue le nombre de brevets et d'articles associées aux développements des procédés micro-structurées. Les principaux travaux sont examinés et regroupés par thème majeur et par pays.

Cette étude a permis de montrer l'état d'avancement des micro-procédés, leurs intérêts commerciaux, d'identifier les principaux acteurs et l'approche technologique adoptée par les industriels pour s'approprier de ces micro-procédés.

Velocys Inc. Plain City / USA, l'un des leaders mondial dans la conception de micro procédés (environ 129 brevets déposés à ce jour) communique très peu sur ses travaux concernant la micro-distillation de mélanges binaires et protège son savoir-faire en l'inscrivant dans le cadre confidentiel.

L'utilisation des micro-procédés pour la distillation de mélanges binaires est très récente mais néanmoins en grande évolution. Dans ce qui suit, on se propose de présenter quelques travaux. Cette présentation ne se veut pas exhaustive mais représentative de l'avancement de la micro-distillation et de l'essor qui est la sienne depuis une dizaine d'années.

Sowata et Kusakabe (2003) ont démontré la faisabilité de la séparation du mélange eau-méthanol dans un dispositif micro-structuré (Figure I. 11) .Les dimensions étaient de 20 mm de largeur, 40 mm de longueur et 2 mm d'épaisseur.

Comme indiqué sur la figure I.11, le dispositif expérimental peut être subdivisé en trois principales zones : une zone d'entrée du mélange à séparer, une zone où se déroule l'équilibre entre les phases liquide et vapeur et, une zone de séparation pour différencier le distillat et le résidu.

Le dispositif est essentiellement constitué de silicium et de verre. Des micro-canaux ont été réalisés sur une plaquette de silicium par photolithographie suivie d'une gravure par voie humide (gravure chimique). La plaque de silicium gravée est ensuite recouverte par un substrat de verre transparent.

A leurs sorties, les deux phases sont séparées par gravité dans une petite chambre de séparation ($8 \times 8 \text{ mm}^2$). Les résultats expérimentaux indiquent que le dispositif proposé par Sowata et Kusakabe permet de réaliser des séparations efficaces de l'ordre de 82%.

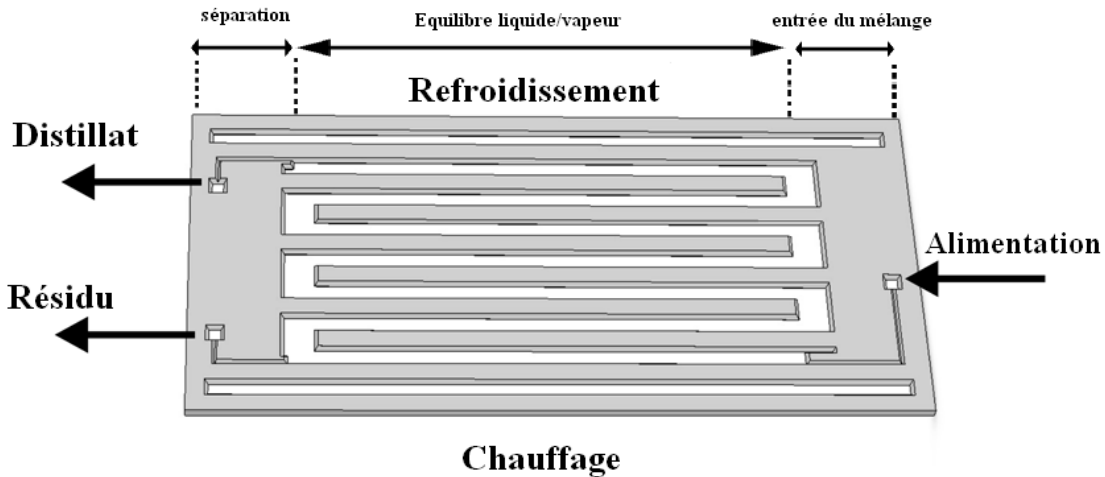


Figure I. 11: Représentation schématique d'un dispositif de distillation de mélange binaire développé par Sowata et Kusakabe (2003)

Silva *et al.* (2008) de la société Velocys Inc, ont publié les résultats expérimentaux pour une distillation utilisant la technologie des micro-canaux, ils rapportent avoir obtenu 15 étages théoriques. Cette unité de distillation sépare un mélange cyclohexane-hexane avec des valeurs de la hauteur équivalente à un plateau théorique (HEPT) comprises entre 0,5 cm et 10 cm, ce qui est beaucoup plus faible comparé aux valeurs obtenues avec les colonnes à distiller classiques qui sont de l'ordre de 30 à 60 cm.

Le concept de ce procédé est basé sur le maintien d'un film mince de liquide de manière qu'il y ait un contact permanent entre le film et une veine gazeuse (Figure I.12), ce qui permet des transferts rapides entre les deux phases. L'épaisseur du film liquide est inférieure à 50 μm .

L'unité de distillation conçu par Velocys Inc, opère sous pression afin d'améliorer l'intégration thermique de l'installation globale. Ceci leur a permis de déterminer le réseau d'échangeurs et d'utilités le plus performant pour les besoins énergétiques du système. L'intégration thermique leur a permis de minimiser les irréversibilités internes du réseau d'échangeurs, et donc d'améliorer ses performances de séparation.

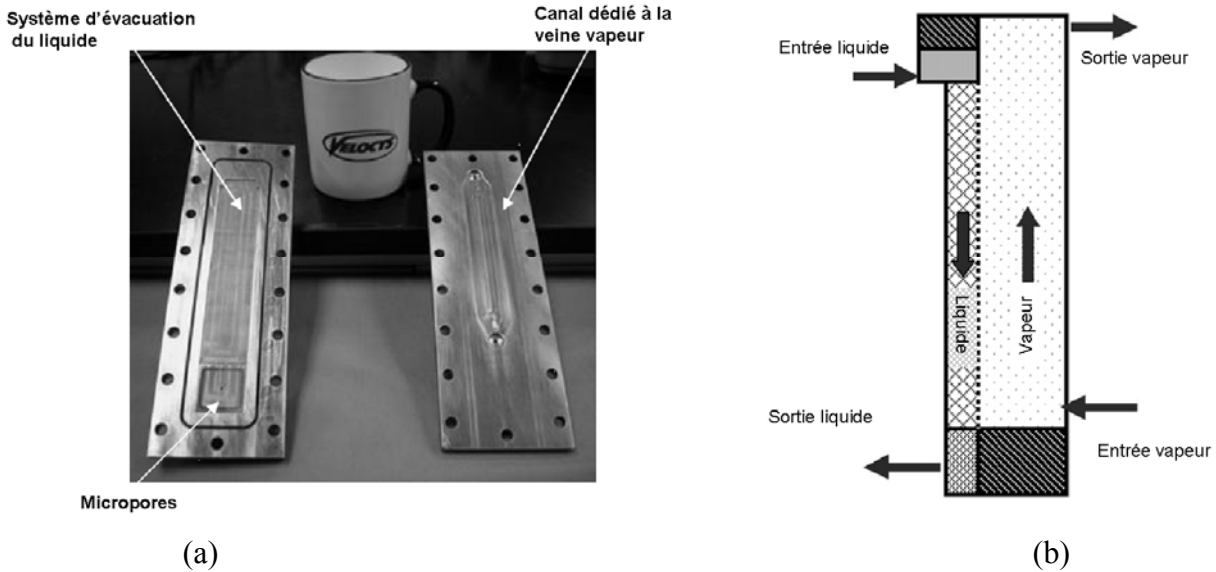


Figure I. 12: Unité de distillation développée par Velocys Inc utilisant la technologie des micro-canaux (a) et Schéma de principe de la distillation (b), Silva *et al.* (2008)

Dans leurs travaux, Wootton *et al.* (2004) présentent un micro-procédé de séparation de mélanges binaires dans un système microfluidique.

La plupart des techniques de distillation classique fonctionne en générant la vapeur *in situ* au sein du séparateur par le biais de l'ébullition du mélange et, en dirigeant la vapeur produite vers un dispositif de refroidissement où elle est condensée. Cependant, ce type d'entraînement de la vapeur n'est pas possible dans un système micro fluidique confiné. Pour ce faire Wootton *et al.* (2004) ont utilisé un gaz vecteur (He) permettant le transport de la vapeur de la section d'évaporation vers le condenseur (par analogie en chromatographie, du transport des constituants par le gaz vecteur dans une colonne capillaire). La figure I.13 montre la représentation schématique du dispositif micro-fluidique.

Le dispositif se compose principalement de trois sections.

Dans la première (section i), le gaz vecteur (He) et le mélange liquide à séparer sont regroupés puis chauffés pendant un court instant.

Ensuite, les flux sont divisés de telles sortes que le liquide et une partie du gaz vecteur soient dirigés vers le réservoir d'alimentation, la vapeur saturée en gaz vecteur est alors acheminée vers un canal qui, du fait de sa longueur permet la condensation de la vapeur (section ii).

La dernière section (iii) se compose d'un module de séparation permettant, de séparer le gaz vecteur et le condensat riche en composé le plus volatil.

En partant d'un mélange binaire équimolaire d'acétonitrile et de diméthylformamide, les auteurs ont réalisé une séparation dans le dispositif (Figure I.13). Ils affirment avoir obtenu, en une seule distillation (sans reflux), un enrichissement du distillat de l'ordre de 90% en acétonitrile. Ce qui selon eux équivaut à 0,72 plateaux théoriques.

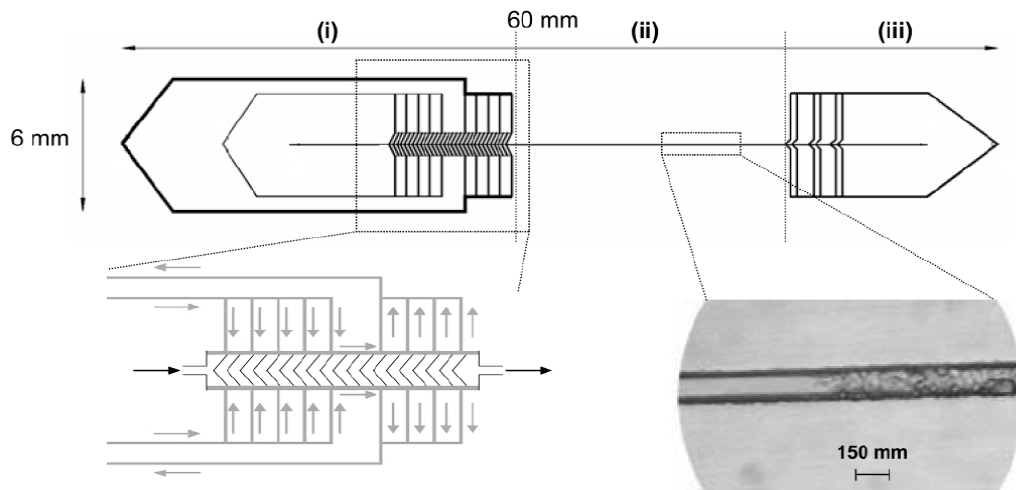


Figure I. 13 : Représentation d'un dispositif de distillation micro-structurée, Wootton *et al.* (2004)

Sundberg *et al.* (2008), ont conçu une nouvelle colonne de distillation micro-structurée avec comme garnissage de la mousse métallique micro-structurée (Figure I.14).

Le procédé est orienté horizontalement afin de limiter l'effet de la gravité. Aux extrémités de la mini-colonne, les températures sont contrôlées et régulées. Le contact liquide /vapeur est intensifié par la mousse métallique utilisée comme garnissage. Les expériences ont été menées à la pression atmosphérique avec comme mélange d'étude un mélange binaire Hexane/Cyclohexane. Une hauteur équivalente à un plateau théorique de 13mm a été obtenue, ce qui a permis d'atteindre des efficacités comparables à celles des garnissages *Sulzer EX*[®] (garnissages structurés de diamètre inférieur à 50 mm pouvant travailler avec de faibles débits de liquide).

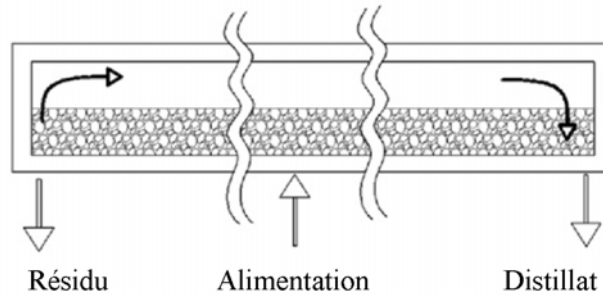


Figure I. 14 : Représentation schématique d'une colonne de distillation avec garnissage micro-structurée, Sundberg et al. (2008)

Hartmann *et al.* (2009) présentent un système micro-fluidique qui permet de séparer des mélanges binaires sur la base de leurs différences de températures. La séparation est réalisée dans le système micro-fluidique à l'aide d'une segmentation de l'écoulement (voir Figure I.15) où est établi l'équilibre liquide/vapeur. Ainsi la vapeur enrichie en composé le plus volatil ainsi que le liquide sont séparés à l'aide des forces capillaires, ce qui permet une opération de distillation à un seul étage théorique. Leurs résultats expérimentaux sont conformes aux prévisions de l'équilibre entre phases.

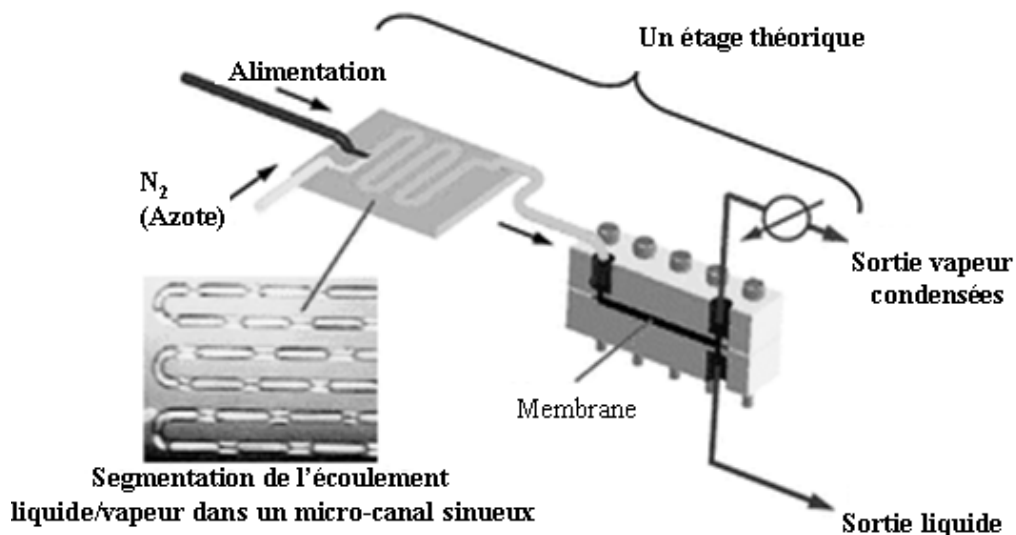


Figure I. 15 : Micro-procédé de distillation de Hartmann *et al.* (2009)

Avec une large utilisation dans les secteurs frigorifiques (des pompes à chaleur), dans l'industrie pétrochimique ou pour le dessalement de l'eau de mer, il est aujourd'hui certain que les évaporateurs à film tombant ont un grand potentiel. Ajouté à cela, le développement récent des

micro-procédés dont l'un des avantages est d'améliorer les transferts de chaleur tout en assurant une réduction des échelles.

Dans le cadre de cette étude, le dispositif expérimental étudié est du type film tombant couplé à la technologie des micro-canaux. La rencontre de ces deux technologies permet de nouvelles performances mais rajoute néanmoins un autre degré de complexité dans le fonctionnement et la compréhension des phénomènes.

Pour mieux cerner tous ces paramètres, on essayera d'analyser dans les parties suivantes : l'hydrodynamique, le transfert de chaleur en film tombant et nous présenterons les principaux modèles et corrélations existants pour décrire le transfert de chaleur en film tombant, et de l'aspect particulier du transfert thermique en micro-canaux.

5. Hydrodynamique des films tombants

5.1 Régimes d'écoulements

L'hydrodynamique du film tombant est caractérisée par trois régimes d'écoulement : le régime laminaire, laminaire-ondulé et turbulent.

Le régime d'écoulement dépend du nombre de Reynolds (Re), du nombre de Kapitza (Ka), du nombre de Weber (We) et des différents rapports géométriques.

Le nombre adimensionnel qui semble le mieux caractériser l'écoulement est le nombre de Reynolds, car ce dernier compare les forces de frottements aux forces d'inertie.

Le nombre de Reynolds se définit comme suit : $Re_L = \frac{\rho_L u_{m,L} D_h}{\mu_L}$ Equation I 18

Où D_h : Le diamètre hydraulique du micro-canal en m,

ρ_L : La masse volumique du liquide en kg/m³

μ_L : La viscosité dynamique du liquide en Pa.s.

$u_{m,L}$: La vitesse moyenne du film liquide en m/s

Le nombre de Kapitza est utilisé pour étudier l'influence de la tension superficielle sur les vaguelettes formées lors de l'écoulement en films tombants et leurs influences sur le transfert thermique.

Le nombre Kapitza est une fonction des propriétés du liquide et est défini comme suit :

$$Ka = \frac{g \mu_L^4}{\rho_L \sigma_L^3} \quad \text{Equation I 19}$$

σ_L représente la tension interfaciale du liquide en N/m, et g l'accélération de la pesanteur ($m.s^{-2}$).

Le nombre de Weber (We), compare les forces d'inertie aux forces surfaciques (relatives à la tension superficielle), il s'exprime comme suit :

$$We_L = \frac{l \rho_L \delta_L u_{m,L}}{4 \sigma_L} \quad \text{Equation I 20}$$

Un faible nombre de Weber est signe de l'existence d'une interface stable (Hardt, 2002).

Fulford (1964) et Grossman (1986) caractérisent la transition des régimes d'écoulement en fonction du nombre de Reynolds :

$Re < 25$ Laminaire lisse,

$25 < Re < 400$ Laminaire ondulé, des vaguelettes peuvent apparaître à l'interface,

$Re > 400$ Ecoulement turbulent.

Yih (1986) propose un autre classement des régimes d'écoulement, avec une description détaillée de la surface du film ; de ce classement il en ressort que dans les films tombants classiques, il existe six types d'écoulements (Tableau I.1). Ces écoulements sont classés par domaine de variation du nombre Reynolds, ce dernier pouvant être exprimé en fonction du nombre de Kapitza.

Types d'écoulement	Description	Domaine de Reynolds
Laminaire Lisse	La surface du film est lisse, Le profil de vitesse est semi-parabolique.	$Re_L < 1,244Ka_L^{-0.1}$
Laminaire ondulé	La surface du film présente des ondulations sinusoïdales de faible amplitude.	$1,244Ka_L^{-0.1} \leq Re_L < 2,88Ka_L^{-0.1}$
	La surface du film présente des ondulations vallonnées.	$2,88Ka_L^{-0.1} \leq Re_L < 5,40Ka_L^{-0.1}$
	La surface du film présente des vagues.	$5,40Ka_L^{-0.1} \leq Re_L < 1600$
Turbulent	La surface du film présente des vagues de capillarité.	$1600 \leq Re_L < 2400$
	Apparition d'anneaux de liquide.	$Re \geq 1600$

Tableau I. 1: Différents régimes d'écoulements de film tombants classiques, classification suivant le nombre de Kapitza (Yih, 1986)

Parmi les aspects influençant le régime d'écoulement, on peut citer entre autres le type de distributeur utilisé pour générer le film tombant, de même que les dimensions géométriques du système étudié (e.g. géométries micro-structurées).

Par ailleurs, il convient de noter que les considérations et les hypothèses valables aux échelles macroscopiques ne sont pas systématiquement transposables aux échelles micro-structurées.

5.2 Epaisseurs des films tombants classiques

Générer des films minces est un moyen efficace pour obtenir une grande aire interfaciale spécifique. Cela permet également de diminuer les résistances aux transferts (de chaleur et de matière) dues à l'épaisseur du film. Cependant, pour ce faire il faut pouvoir stabiliser le film de faible épaisseur, c'est en ce sens que la micro-structuration permet cela. En effet, le liquide est canalisé dans des rainures de quelques centaines de micromètres de profondeur et de largeur.

L'épaisseur du film tombant peut être calculée de plusieurs manières suivant le régime de l'écoulement par des équations toutes dérivées de la théorie du film.

L'expression traditionnelle de l'épaisseur du film tombant a été introduite par Nusselt (1916) qui a traité analytiquement ce problème par la résolution des bilans de quantité de mouvement, ce qui

permet d'exprimer l'épaisseur d'un film tombant sur une **plaque plane lisse de largeur infinie** suivant l'expression :

$$\delta_{Nu,L} = \left(\frac{3v_L^2 Re_L}{g \sin \theta} \right)^{1/3} \cdot \left(\frac{\rho_L}{\rho_L - \rho_c} \right)^{1/3} \quad \text{Equation I- 21}$$

Avec $Re_L = \frac{\rho_L u_{m,L} D_h}{\mu_L}$ **Equation I- 22**

et $u_{m,L}$: la vitesse moyenne d'écoulement du liquide dans un canal

D_h : le diamètre hydraulique caractéristique de l'écoulement liquide.

θ : angle d'inclinaison par rapport à l'horizontale

ρ_c : densité d'une deuxième phase associée au liquide

Dans notre cas, la plaque est verticale : $\theta=90^\circ$ et le facteur de densité $\left(\frac{\rho_L}{\rho_L - \rho_c} \right)$ peut être négligé car $\rho_L \gg \rho_c$, ce qui transforme l'équation I-21 comme suit :

$$\delta_{Nu,L} = \left(\frac{3v_L^2 Re_L}{g} \right)^{1/3} \quad \text{Equation I- 23}$$

D'autres relations inspirées de l'analyse de Nusselt permettent l'évaluation de l'épaisseur du film suivant le régime d'écoulement, parmi celles-ci, la relation de Kapitza évalue l'épaisseur du film en régime laminaire ondulé (Eq.I.24).

$$\delta_{Ka,L} = \left(\frac{2,4v_L^2 Re_L}{g \sin \theta} \right)^{1/3} \cdot \left(\frac{\rho_L}{\rho_L - \rho_c} \right)^{1/3} \quad \text{Equation I- 24}$$

5.3 Evaluation des épaisseurs de films tombants en micro-canaux

Dans les systèmes conventionnels, différentes géométries de contacteurs sont utilisées pour générer des films tombants, parmi celles-ci on peut trouver des géométries sphériques, cylindriques et verticales planes.

Avec les techniques de micro-fabrication, la micro-structuration des géométries planes est plus facile à réaliser. Une configuration géométrique possible sur une plaque plane serait la

structuration en mini ou micro-canaux verticaux pour stabiliser et orienter le film liquide. Une fois dans la chambre de distribution, le débit liquide est distribué dans chaque canal où il s'écoule vers le bas sous l'effet de la gravité (Figure I.16).

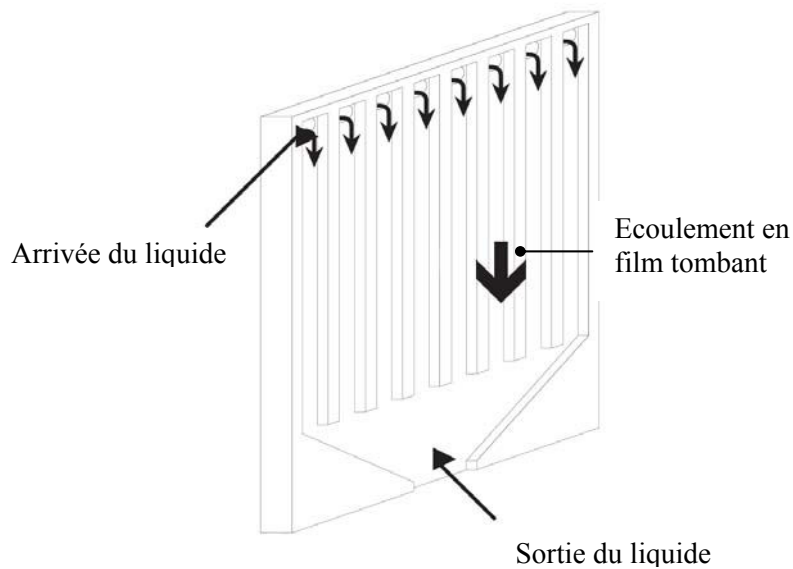


Figure I. 16 : Structuration géométrique d'une plaque pour la stabilisation du film tombant

Soit \dot{V} le débit volumique alimentant la plaque. La vitesse moyenne du film liquide dans un micro-canal peut s'exprimer comme étant le rapport du débit volumique reçu par une plaque sur la section du film liquide, soit :

$$u_{m,L} = \frac{\dot{V}}{n_c \delta_L w_c} \quad \text{Equation I- 25}$$

Avec n_c : le nombre de canaux, w_c la largeur d'un canal et δ_L : l'épaisseur du film tombant.

Le diamètre hydraulique d'une conduite peut être défini comme étant le rapport de la section de passage du liquide (Ω_L) par le périmètre mouillé (P_L) multiplié par quatre. Dans le cas de micro-canaux à section droite rectangulaire et ouverte (Figure I.17), le diamètre hydraulique équivaut à :

$$D_h = 4 \frac{\text{surface occupée par le liquide dans un canal}}{\text{périmètre mouillé par le liquide dans un canal}} = 4 \frac{\Omega_L}{P_L} \quad \text{Equation I- 26}$$

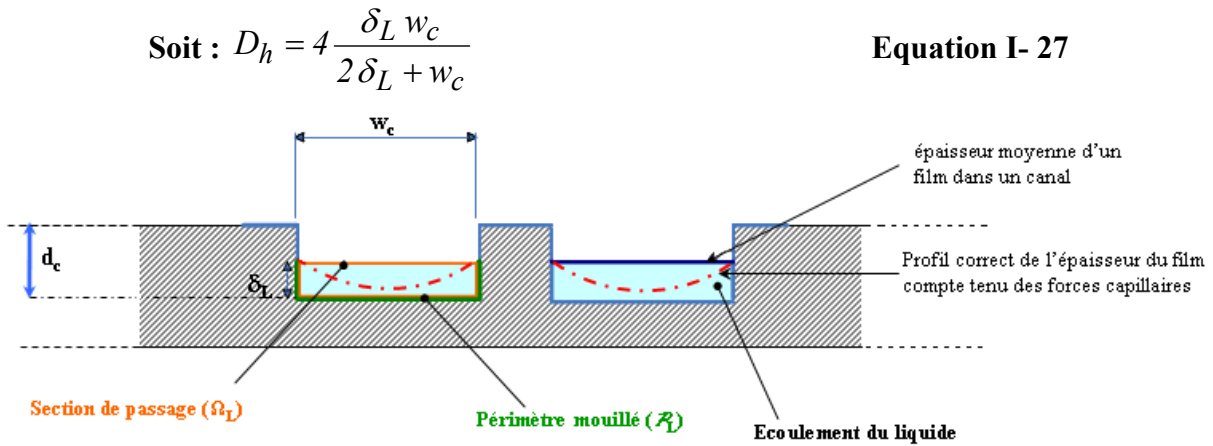


Figure I. 17: Représentation schématique du périmètre mouillé, de la section de passage dans un micro-canal ouvert.

Dans la définition du diamètre hydraulique et dans le but de simplifier l'équation I-26, Hessel *et al* (2000) ont fait l'hypothèse que le diamètre hydraulique (D_h) est égal à l'épaisseur moyenne du film tombant, ce qui, en remplaçant " D_h " par " δ_L " réécrit le nombre de Reynolds comme suit :

$$Re_L = \frac{\rho_L u_{m,L} \delta_L}{\mu_L} \quad \text{Equation I- 28}$$

Dans le cas de l'écoulement d'un film tombant dans des micro-canaux verticaux, Hessel *et al.* (2000) proposent une formule simplifiée de la relation de Nusselt (Equation I- 23) qui devient :

$$\delta_L = \frac{3\dot{V}\mu_L}{g\rho_L w_c n_c}^{\frac{1}{3}} \quad \text{Equation I- 29}$$

Cette dernière relation considère que le périmètre mouillé est égal à $n_c w_c$, elle suppose que seule la paroi inférieure des canaux est mouillée et non les parois latérales.

Nous n'adopterons pas cette relation dans notre étude, et prendrons comme diamètre hydraulique, celui défini par l'équation I-27

Après substitution de la vitesse moyenne du liquide (Equation I-25) et du diamètre hydraulique (Equation I-27), dans l'expression du nombre de Reynolds, on peut réécrire l'équation I-23. L'épaisseur de Nusselt pour les micro-canaux peut finalement s'exprimer comme suit :

$$\delta_{Nu,L} = \frac{12 \mu_L \dot{V}}{g \rho_L n_c (2\delta_{Nu,L} + w_c)}^{1/3} \quad \text{Equation I- 30}$$

Dans le cas des micro-canaux verticaux, en négligeant le facteur de densité $\left(\frac{\rho_L}{\rho_L - \rho_c}\right)$, l'épaisseur du film par la relation de Kapitza (Equation I-24) se réécrit comme suit :

$$\delta_{Ka,L} = \left(\frac{9,6 \mu_L \dot{V}}{g \rho_L n_c (2\delta_{Ka,L} + w_c)} \right)^{1/3} \quad \text{Equation I- 31}$$

Ces équations présentées ici ne tiennent pas compte des notions de tension de surface et d'angle de contact, car elles ont été élaborées pour des films en deux dimensions.

La détermination de l'épaisseur du film liquide δ_L et du nombre Reynolds Re_L est basée sur l'évaluation du périmètre mouillé et de la section de passage du liquide. Ces derniers sont très sensibles à l'emplacement des lignes de contact liquide-paroi que sont : la partie inférieure du canal et ses deux parois latérales.

Yeong *et al.* (2006) ont étudié le degré de précision de l'équation de Nusselt dans l'estimation des épaisseurs de films tombants, en confrontant les mesures expérimentales effectuées par microscopie confocale et d'autres équations permettant également d'estimer l'épaisseur du film, dont celle de Kapitza citée plus haut.

L'épaisseur du film a été mesurée expérimentalement pour différents débits pour l'éthanol et l'iso-propanol, en utilisant la microscopie confocale. A ces mesures ont été comparées les relations théoriques de Nusselt et de Kapitza (Equations I-30 et I-31). Cette comparaison a conduit au constat que la relation de Kapitza donne une meilleure estimation de l'épaisseur pour l'éthanol et l'iso-propanol que la relation de Nusselt. Il a été établi que la relation de Nusselt sous-estime d'environ 20% l'épaisseur du film.

Compte tenu de la difficulté de visualiser le film tombant dans cette étude, ceci nous amène à adopter la relation de Kapitza pour l'estimation des épaisseurs de films.

L'étude réalisée par Yeong *et al.* (2006) permet d'éclairer un autre aspect du problème, qui est la mise en œuvre des forces de capillarités aux faibles débits ainsi que l'aspect non uniforme de

l'épaisseur du film tombant. En effet, aux faibles débits de liquides, les forces de capillarités dominant sur la pesanteur, ce qui implique une distorsion de la surface du film liquide.

La figure I.18 représente les travaux de Yeong *et al.* (2006) qui illustre le profil surfacique du film liquide à différents débits volumiques mesuré par profilométrie.

Pour les faibles nombres de Reynolds, le film liquide est tiré vers le haut si bien que l'épaisseur du film est plus importante aux bords du canal (ménisque). Lorsque le débit augmente, l'épaisseur du film liquide augmente et le ménisque devient de plus en plus plat.

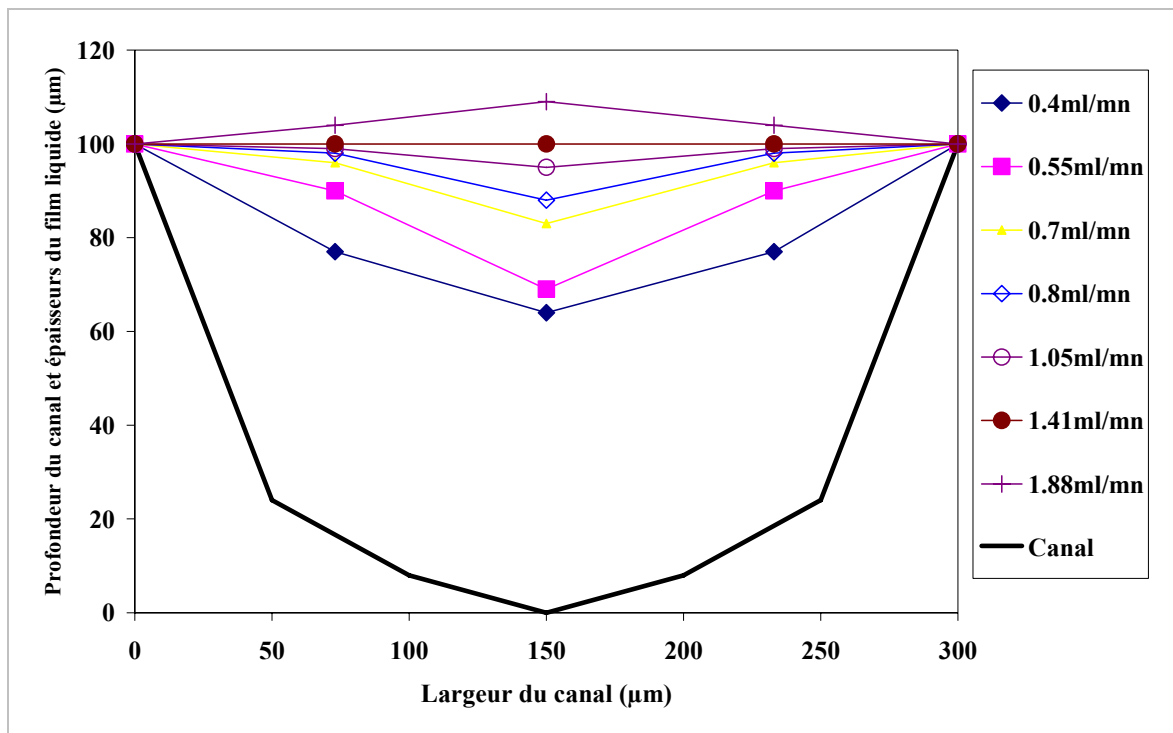


Figure I. 18 : Profilométrie de la surface du liquide à différents débits volumiques d'éthanol pour un canal de largeur $w_c = 300\mu\text{m}$ et de profondeur $d_c = 100\mu\text{m}$ [Yeong *et al.* (2006)]

5.4 Pourquoi micro-structurer ?

La comparaison entre les plaques micro-structurées et la plaque lisse révèle la grande utilité de la micro-structuration des surfaces d'échange. En effet une plaque non-structurée identique aux plaques présentées ici possède potentiellement une aire interfaciale $a_{L/V}$ spécifique supérieure, mais il est difficile d'obtenir un film liquide uniforme sur toute la surface pour de faibles débits.

Le mouillage de plaque n'étant pas uniforme, la surface de contact ne serait pas totalement occupée par le film liquide. Ce dernier a alors tendance à s'écouler sous forme de filets (expérience visuelle). La quasi-totalité de la surface d'échange reste alors inexploitée et présente des zones sèches stationnaires de part et d'autre d'un filet liquide (Figure I.19), notamment pour les faibles débits de liquide, ce qui compromet donc l'homogénéité des transferts de matière et de chaleur.

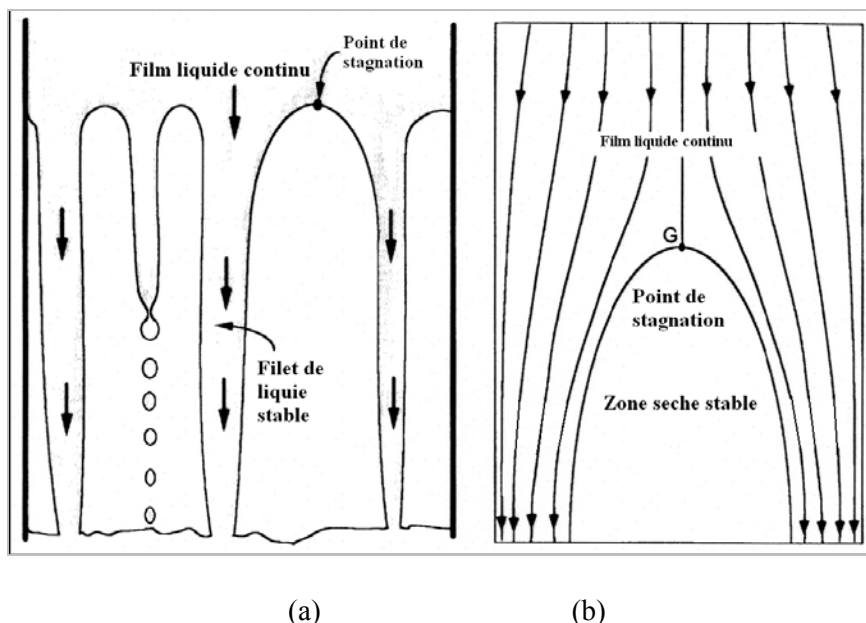


Figure I. 19 : Représentation schématique de la rupture d'un film tombant (a) et d'une zone sèche stable sur un support non structuré (proposé par (El-Genk et Saber (2001)))

Pour un mouillage total de la plaque lisse, un débit de liquide élevé est requis. La micro-structuration de la surface, bien qu'elle engendre potentiellement la perte d'une surface correspondant à l'espacement entre les micro-canaux, permet néanmoins de structurer l'écoulement liquide en permettant d'exploiter toute la surface de contact offerte. Ceci permet l'amélioration significative des transferts par rapport à une plaque lisse.

La stabilisation des films tombants aux faibles débits est due à un effet de guidage des canaux empêchant le ruissellement du liquide hors des canaux, comme illustrée sur la figure I.20, dans un canal, le liquide est en contact avec trois parois, contre une seule pour une plaque lisse, de ce

fait pour une plaque structurée disposant de canaux de tailles submillimétriques, les forces capillaires interviennent pour stabiliser le film liquide, ceci permet de travailler à des débits plus faibles.

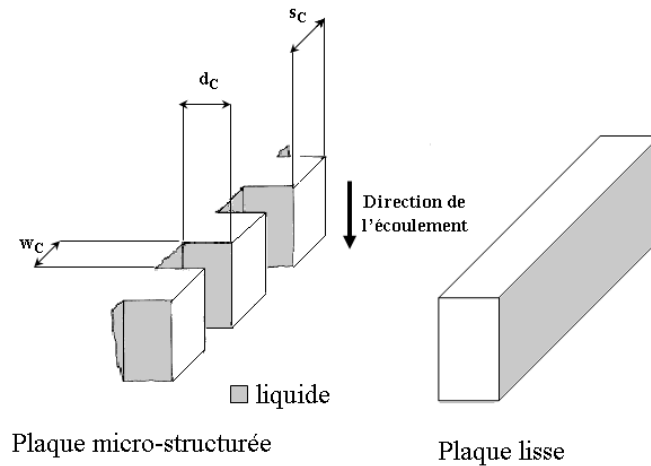


Figure I. 20: Mise en évidence des surfaces de contacts entre le film liquide et la plaque dans le cas d'une plaque micro-rainurée et d'une plaque lisse : dans un canal le liquide est en contact avec trois parois contre une seule pour une plaque lisse.

5.4.1 Influence de la structuration sur la stabilisation du film tombant

Afin de montrer l'intérêt de structurer la plaque, il est intéressant de connaître, pour une épaisseur de film connue, quel est le débit volumique de liquide correspondant.

La relation de Hessel (2000) (Equation I-29) permet d'exprimer pour une plaque donnée, l'évolution du débit en fonction de l'épaisseur, l'expression obtenue se présente comme suit :

$$\dot{V} = \delta_L^3 \frac{\rho w_c n_c g}{3\mu_L} \quad \text{Equation I- 32}$$

5.4.2 Mouillage des plaques et équipartition de l'écoulement sur la structure

5.4.2.1 Mouillabilité des plaques

5.4.2.1.1 Influence de la nature du liquide (tension interfaciale)

Dans les mécanismes de transferts thermiques, plus particulièrement lors de l'évaporation de films tombants, les tensions de surface jouent un rôle décisif. En effet si la tension de surface entre un matériau et un liquide est faible, l'angle de contact qui en résulte est faible (Nicolaiewsky, 1999), ce qui favorise une meilleure mouillabilité du matériau.

Pour la plupart des systèmes liquide-solide, l'angle de contact n'est généralement pas connu. Thome et Shock (1984) ont présenté les valeurs d'angles de contact pour l'eau, l'éthanol et le *n*-propanol (Tableau I.2) avec comme support solide, le laiton.

L'eau donne un angle de contact beaucoup plus grand sur le laiton, alors que les angles de contact de l'éthanol et du *n*-propanol sont beaucoup plus faibles. Ainsi, la mouillabilité du laiton est meilleure avec l'éthanol et le *n*-propanol qu'avec l'eau.

liquide	support	Angle de contact (degrés)
Eau	Laiton	84
Ethanol	Laiton	14-18
n-Propanol	Laiton	8

Tableau I. 2: Angles de contact de l'eau, l'éthanol et le *n*-propanol sur du laiton à 20°C [Thome et Shock (1984)]

5.4.2.1.2 Influence de l'état de surface

Il apparaît que selon la nature du support et les propriétés physico-chimiques du film liquide tombant, les propriétés thermo capillaires entre le liquide et la paroi se trouvent modifiées, ce qui laisse prévoir une influence sur les mécanismes de transferts thermiques.

La loi de Young-Dupré [Young, 1805] donne l'expression de l'angle de contact d'une goutte liquide déposée sur un support solide (Figure I.21), en équilibre avec une phase vapeur :

$$\gamma_{LV} \cdot \cos \theta_c = \gamma_{SV} - \gamma_{SL}$$

Equation I- 33

Où : γ_{SV} , γ_{SL} et γ_{LV} désignent respectivement la tension de surface des interfaces solide/vapeur, solide/liquide et liquide/vapeur. Cette loi théorique n'est cependant valable qu'avec des surfaces parfaitement lisses.

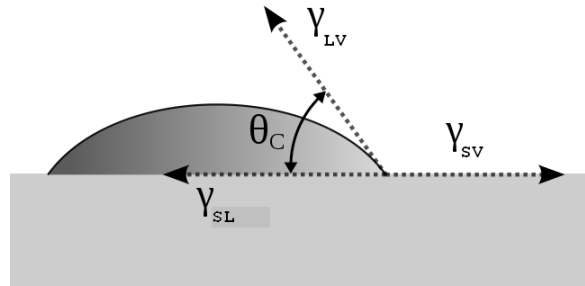


Figure I. 21: représentation de l'angle de contact d'une goutte de liquide sur une surface solide

La première étude abordant la question de l'influence de la structuration sur l'angle de contact a été menée par Wenzel (1936). Pour Wenzel, une surface rugueuse offre une aire spécifique plus importante qu'en présence d'une surface lisse. De ce fait les énergies de surfaces mises en jeu y seront plus importantes comparée à une surface lisse. Ainsi, pour tenir compte de la rugosité de la surface, Wenzel propose une expression corrigée de l'angle de contact et fait intervenir la rugosité :

$$\gamma_{LV} \cos \theta_w = R(\gamma_{SV} - \gamma_{SL}) \quad \text{Equation I- 34}$$

R est une mesure de la rugosité moyenne de la surface. Elle est définie comme le rapport entre la surface réelle et la surface géométrique :

$$R = \text{rugosité de la surface} = \frac{\text{surface réelle}}{\text{surface géométrique}} \quad \text{Equation I- 35}$$

En reliant les équations I-33 et I-34, on aboutit à l'expression suivante :

$$\cos \theta_w = R \cos \theta_y \quad \text{Equation I- 36}$$

L'équation I-36 liant l'angle de contact d'une surface rugueuse (Wenzel, 1936) à celle d'une surface lisse (Young–Dupré, 1805) montre qu'une augmentation de la rugosité de la surface (R) ou de la structuration des surfaces entraîne une diminution de l'angle de contact. On peut dire qu'une augmentation de la rugosité de la surface favorise une meilleure mouillabilité du support.

Il est toutefois utile de préciser que les mesures d'angle de contact sont valables en statique et non en dynamique lors de l'écoulement en film tombant.

5.4.2.2 Méthodes de caractérisation de l'équipartition de l'écoulement

Des études ont été réalisées dans des systèmes similaires au nôtre et utilisant la technologie des films tombants [Hessel (2000), Wille (2000), Möllmann (2004)]. Ces études ont eu pour objectifs, d'une part de caractériser la mouillabilité des supports structurés, et d'autre part d'étudier la répartition du liquide dans les micro-canaux ouverts.

L'équipartition du film liquide dans des micro-canaux verticaux ouverts a été principalement étudiée lors de deux différentes études.

La première étude réalisée par Hessel *et al.* (2000) a consisté en une analyse d'images de photographies faites lors de l'écoulement d'un liquide (acétonitrile) en absence de gaz (Figure I.22) sur une plaque préalablement sèche à des intervalles de temps réguliers.

Cette méthode montre, aux vues des photographies que le front du liquide est pratiquement horizontal et se déplace à vitesse constante, ceci est le signe d'une bonne équipartition de l'écoulement dans les micro-canaux verticaux. En visualisant le comportement du liquide après le premier mouillage, Hessel *et al.* (2000) observent que le régime laminaire décrit correctement l'écoulement du liquide et que l'équipartition des courants dans les canaux est correcte.

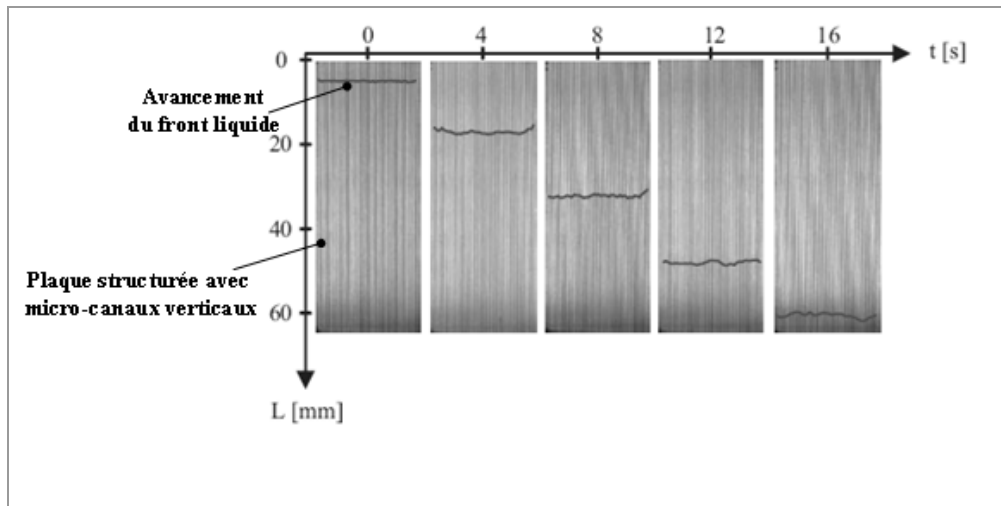


Figure I. 22: Suivi du déplacement du front liquide (acétonitrile) sur une plaque à micro canaux ouverts en fonction du temps. Un traceur a été ajouté au liquide afin d'améliorer la résolution des photographies [Hessel *et al.* (2000)].

La deuxième étude, menée par Möllmann *et al.* (2004), est basée sur la thermographie infrarouge (méthode en temps réel). La température de la plaque structurée (préalablement séchée) est régulée grâce à un micro-échangeur de chaleur intégré. Pendant ce temps, le liquide observé s'écoule en film tombant dans les micro-canaux. Le principe de l'observation consiste ici à suivre l'avancée du front liquide le long de la plaque. La différence d'émissivité entre le film liquide et la plaque permet de distinguer deux zones grâce à la caméra infrarouge : les zones mouillées sont de couleurs blanches brillantes et les zones sèches de couleurs sombres (figure I.23).

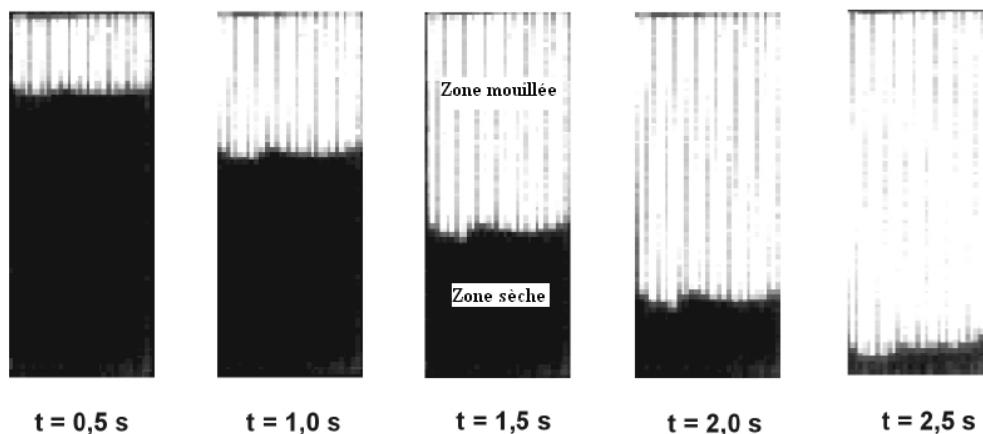


Figure I. 23: Équipartition d'un liquide dans des micro-canaux verticaux ouverts ($1200 \times 400 \mu\text{m}^2$). Le liquide (iso-propanol) est chauffé à 31°C , le débit volumique est de 4 ml/min [Möllmann *et al.* (2004)].

6. Généralités en ébullition : L'expérience de Nukiyama

Dans les systèmes mettant en jeu l'existence des phénomènes d'ébullition, l'ébullition en vase ou « *pool boiling* » est un des points de départ habituel dans la démarche d'explication et de différenciation des phénomènes de transferts de chaleur en ébullition.

En 1934, Nukiyama rapporte pour la première fois, la courbe complète de l'ébullition en vase. Le principe étant de plonger un filament chauffant dans un liquide porté à sa température d'ébullition. La puissance thermique dissipée dans le fil électrique chauffant est déterminée en mesurant la différence de potentiel aux bornes du fil (U) et l'intensité de courant (I) qui le traverse, le produit ($P_{\text{électrique}} = U.I$) de ces deux derniers donne la puissance électrique imposée. La température du fil (θ_p) supposée uniforme est déterminée grâce à la connaissance de sa résistance électrique ($R = U/I$), compte tenu de sa variation avec la température ($\theta_p = f(R)$). Dans ce cas le chauffage s'effectue à flux thermique imposé.

La figure I.24 donne la densité de flux de chaleur (q) en fonction de la surchauffe de la paroi par rapport à la température de saturation qui est la température du bain liquide. Suivant les valeurs des différences de température ($\Delta\theta$), Nukiyama décrit différents régimes d'ébullition.

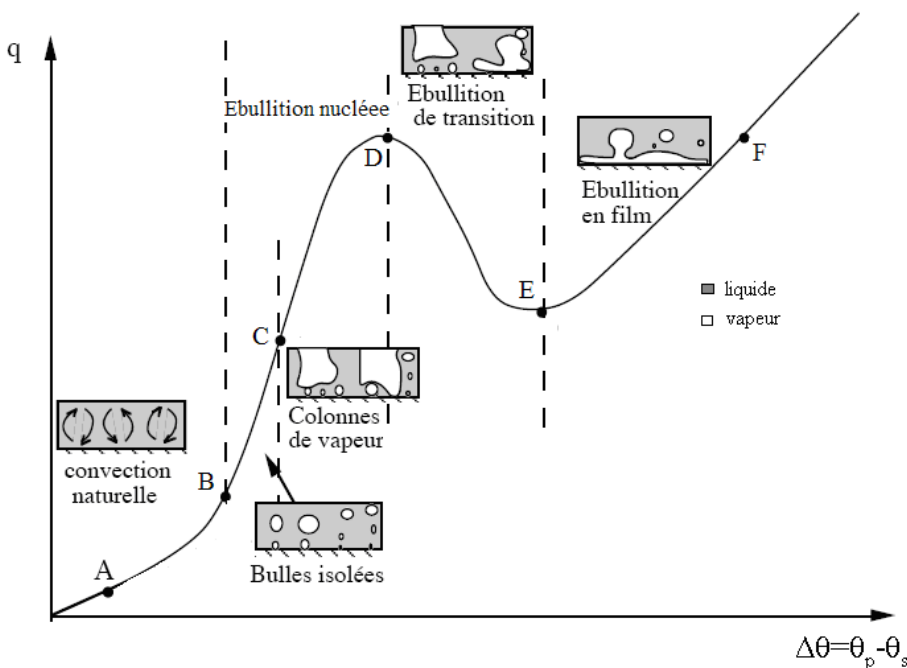


Figure I. 24 : Courbe d'ébullition en vase de Nukiyama (1934) pour l'eau pure

Convection naturelle (AB)

A la surface chauffante, le transfert se fait par conduction et convection. Ensuite un transfert convectif transporte l'énergie jusqu'à la surface libre où a lieu l'évaporation.

La naissance de l'ébullition au point B a lieu lorsque les premières bulles se forment à la surface chauffante. Ces bulles quittent la paroi pour atteindre la surface libre.

Ebullition nucléée (BC et CD)

La phase d'ébullition nucléée se décompose en deux étapes :

Phase BC : aux faibles flux, Les bulles se forment à la paroi sur la plupart des sites existants et sont bien individualisées et sans interaction, cette phase est aussi appelée phase d'ébullition nucléée partielle.

Phase CD : aux flux plus élevés, la vitesse de génération de la vapeur est importante, on voit apparaître des colonnes de vapeur avec une forte interaction entre sites voisins puisque leurs nombre est plus important. Cette étape est assimilée à la phase où l'ébullition nucléée est pleinement développée.

Le pic d'ébullition nucléée est atteint lorsque la formation de vapeur devient suffisamment importante pour diminuer le débit de retour du liquide à la paroi, ce qui empêche le remouillage de la paroi, et provoque la formation d'un film de vapeur à la surface.

Ebullition de transition (DE)

Cette zone instable ne peut être obtenue que par le contrôle de la température de surface. Le film de vapeur collapse et se reforme sous l'action des courants de convection naturelle.

A mesure que la température de paroi augmente, l'aire mouillée diminue, induisant à son tour une diminution de la chaleur transférée.

Ebullition en film (EF)

Un film de vapeur s'installe de façon continue à la surface chauffée et l'interface liquide vapeur a une forme constamment variable due au départ ordonné de bulles vers la surface libre. Aux flux de chauffes très élevés, un échange radiatif s'ajoute à la conduction dans le film.

Le minimum d'ébullition en film (E), est souvent appelé point de Leidenfrost. L'effet Leidenfrost (Figure I.25) est un phénomène qui met en lévitation une goutte d'eau sur une plaque

chaude du fait d'un coussin de vapeur qui s'installe entre la plaque et le liquide. Ce phénomène a été décrit par Johann Gottlob Leidenfrost (1966).

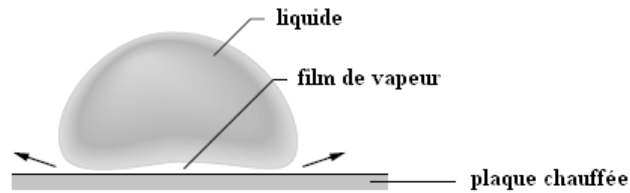


Figure I. 25: Représentation schématique de l'effet Leidenfrost

Le point (F) de la courbe correspond à la température maximale de la paroi que l'on peut atteindre en raison de la fusion du matériau constituant le filament chauffant de l'expérience de Nukiyama. Ce point est particulièrement surveillé dans les systèmes industriels mettant en jeu des phénomènes d'ébullition afin d'éviter l'endommagement des équipements.

7. Ebullition convective

La convection est un mode de transport de l'énergie par l'action combinée de la conduction, de l'accumulation de l'énergie et du mouvement du milieu. La convection est le mécanisme le plus important de transfert d'énergie entre une surface solide et un liquide ou un gaz.

Ainsi, lors de l'écoulement d'un fluide, l'énergie emmagasinée en son sein est transportée sous l'effet de son mouvement.

Selon le mode d'écoulement du fluide, la transmission de chaleur par convection est désignée sous les termes de convection libre ou de convection forcée. Lorsqu'elle se produit au sein du fluide du fait des simples différences de température entre courants, on dit que la convection est **naturelle** ou **libre**. Par contre si le mouvement du fluide est provoqué par une action externe, telle une pompe par exemple, le processus de transmission de la chaleur est appelé convection **forcée**.

Pour une meilleure compréhension des modes d'ébullition susceptibles d'être observés dans le micro-contacteur à film tombant, il est utile d'avoir une compréhension de base des différentes régions de transfert lors de l'ébullition convective dans un tube vertical.

Pour l'ébullition convective, l'orientation du système (verticale ou horizontale) joue un rôle déterminant, ceci indépendamment des influences significatives de la différence de température entre la paroi et le fluide, les propriétés du liquide, la mouillabilité de la paroi sur transferts thermiques en ébullition nucléée.

Puisque dans le cas spécifique de cette thèse, la configuration d'écoulement étudiée est orientée verticalement (film tombant), on s'intéressera plus spécifiquement à cette configuration d'écoulement.

Nous illustrons sur la figure I.26, une représentation classique des régimes d'ébullition dans un tube vertical chauffé uniformément sur toute sa longueur par un flux thermique, le tube est alimenté à sa base avec un liquide sous-refroidi.

D'une manière progressive on peut identifier sur toute la longueur de ce tube, les modes d'écoulements rencontrés ainsi que les zones de transfert thermique correspondantes.

Si le liquide est chauffé jusqu'à saturation et que la température de la paroi reste inférieure à celle de nucléation, le processus de transfert de chaleur est monophasique liquide en convection forcée (région A).

À certains points du tube, les conditions à la paroi sont telles que la formation de vapeur par nucléation est possible.

La formation de vapeur prend place initialement en présence de liquide sous-refroidi (région B), le mécanisme de transfert chaleur est dit « d'ébullition nucléée sous-refroidie ». Dans cette région, la température de la paroi reste essentiellement constante et légèrement supérieure à la température de saturation, alors que la température moyenne du fluide croit jusqu'à saturation.

La différence de température entre la paroi (θ_p) et le liquide saturé (θ_s) est appelé « degré de surchauffe ». La transition entre la zone B et C (B : régime d'ébullition nucléée sous-refroidi, C : régime d'ébullition saturée) est bien défini du point de vue thermodynamique, car cette transition entre ces deux zones est définie quand le fluide atteint sa température de saturation.

Dans la zone allant de C à G, la variable caractérisant le transfert thermique est la qualité thermodynamique x du fluide. Elle représente le rapport entre débit massique de vapeur et débit total d'alimentation, elle est souvent appelée fraction massique de vapeur ou fraction de vide.

Dans cette zone C et G, x est compris entre 0 et 1. Les valeurs de ce titre x servent donc à indiquer si le liquide est sous-refroidi ou en état de vapeur surchauffée.

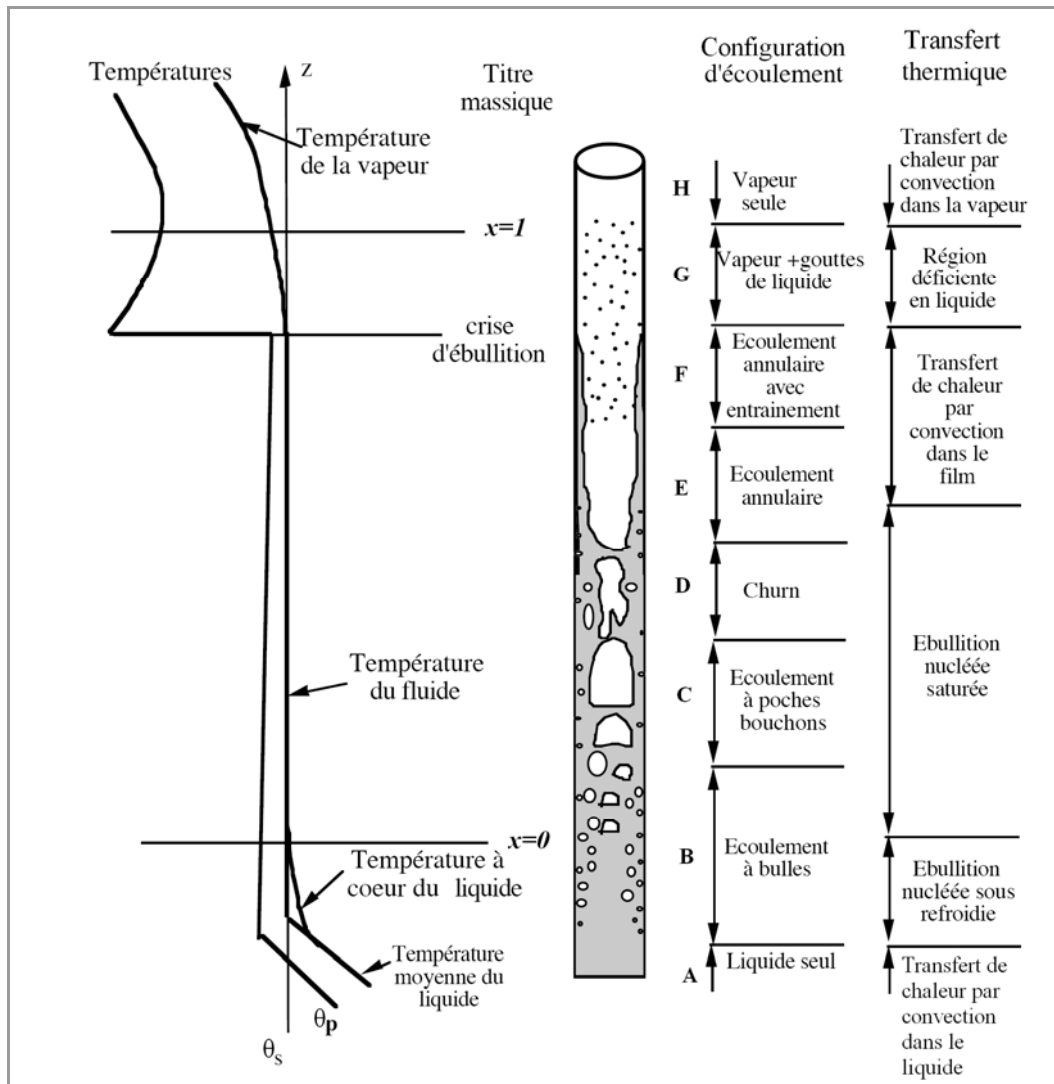


Figure I. 26: Différents régimes d'ébullition dans un tube évaporateur vertical (Collier et John R. Thome 1996)

Le processus d'ébullition disparaît et il est remplacé par l'ébullition convective. En effet, la transition de l'ébullition nucléée à l'ébullition convective passe par un changement dans le mode d'écoulement du fluide, car l'écoulement à bulles laisse place à l'écoulement annulaire dans la zone E-F. Le mode d'écoulement du film liquide sur la paroi empêche l'ébullition nucléée. Dans cette zone, la chaleur est évacuée de la paroi par convection forcée.

Aux flux de chauffe élevés, des zones sèches peuvent apparaître. La fine épaisseur de film liquide permettant le transfert thermique peut disparaître totalement du fait de l'entraînement du liquide par la vapeur et/ou par vaporisation, ce qui provoque l'assèchement complet de la paroi chauffée. A ce stade, la phase vapeur devient prédominante, formant ainsi un écran au transfert thermique,

ceci serait la principale cause de la chute du coefficient de transfert thermique [Collier, 1996]. Le transfert thermique s'effectue alors par conduction à travers la zone sèche.

8. Mécanisme de la nucléation de bulles sur une surface chauffée

Afin de mieux comprendre la phénoménologie de l'ébullition nucléée, on s'intéresse aux différentes phases conduisant à la formation d'une bulle de vapeur sur une paroi chauffée. Carey (1992) présente les mécanismes de croissance d'une bulle sur une paroi chauffée, les détails du cycle d'ébullition sont représentés sur la Figure I-27 et sont expliqués comme suit :

À l'instant initial ($t=0$), une bulle vient de partir de la paroi. Le site de nucléation représenté n'est pas actif car la paroi est refroidie et remouillée par du liquide à la température de saturation. Cette phase correspond aussi à la destruction de la couche limite thermique provoquée par le départ de la bulle.

Pendant un temps d'attente noté t_a , le liquide se surchauffe. Cette phase d'attente est nécessaire pour la reconstruction de la couche limite thermique qui favorise l'initialisation d'une nouvelle bulle.

Pendant la phase de croissance, une partie de la chaleur nécessaire au changement d'état provient de zones de liquide surchauffées adjacentes à la bulle. La bulle croît très rapidement avec une forme hémisphérique favorisant la vaporisation de la microcouche de liquide présente à sa base. Durant cette phase, la diffusion de la chaleur à l'interface est un facteur limitant. Puis la bulle prend une forme plus sphérique contrôlée par la tension de surface.

Avant le départ de la bulle, elle atteint son diamètre de détachement, elle monte en entraînant avec elle une partie de la couche limite thermique. La bulle se détache lorsque l'équilibre des forces est rompu c'est-à-dire, lorsque les effets de tension de surface deviennent inférieurs aux forces agissant en faveur du détachement de la bulle (le retour progressif du liquide sur la paroi aide la bulle à se détacher).

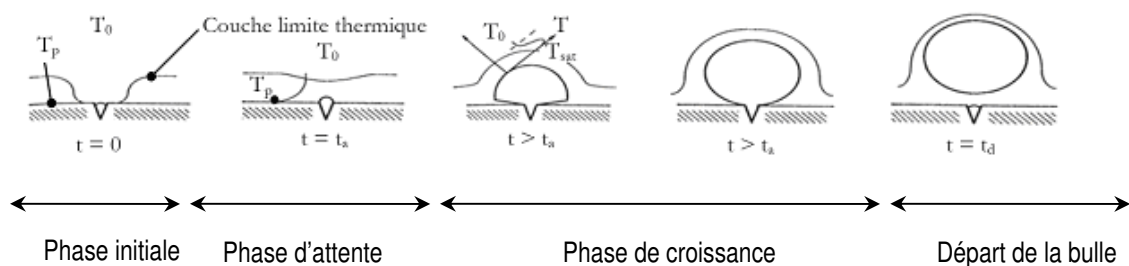


Figure I. 27: Représentation schématique du cycle d'ébullition sur une paroi [Carey, 1992]

9. Transfert de chaleur en films tombants

Les évaporateurs à films tombants sont très utilisés dans les industries alimentaires pour la concentration des liquides alimentaires (jus, lait) afin d'éviter de dénaturer les protéines ou de perdre leur activité vitaminique, ces équipements sont également utilisés dans des procédés de désalinisation de l'eau de mer [Ben Jabrallah *et al.* 2002].

Les principaux avantages des films tombants sont :

- Le faible temps de contact entre le film liquide et la paroi chauffée qui est un facteur important dans le cas de l'évaporation de produits thermosensibles tels que les produits alimentaires ou des polymères volatils.
- Les valeurs de coefficients de transfert thermique élevées, les pertes de charge faibles, la faible rétention du fluide...

Dans son ouvrage intitulé : *Handbook of evaporation technology*, Minton [1986] a résumé de nombreuses technologies utilisées dans la conception des évaporateurs à film tombant.

De nombreux travaux ont traité de l'hydrodynamique des films tombants, des transferts de chaleur et de matière, dont les premiers ont été menés par Seban [1978], Ganic [1981] et Ganic et Mastanaiah [1981].

Dans une étude plus générale, Smith [1983] cite les travaux de Whitt (1966) et recommande les corrélations de Chun et Seban [1971, 1972] pour l'ébullition de composés purs.

Depuis 1980, des travaux pertinents ont été réalisés en évaporation de mélanges binaires notamment par Schlunder (1982) et ses collaborateurs (Schnabel, 1980; Gropp, 1981).

Schlunder (1982) a appliqué la théorie du film à l'ébullition nucléée et a montré l'influence du transfert de masse sur le phénomène de l'ébullition nucléée. Ces effets ont pu être expliqués en utilisant un facteur de transfert de chaleur qui dépend du transfert de masse, ce dernier étant déterminé empiriquement.

Ces travaux sont suivis par ceux de Sardesai, Palen et Thome (1986) confirmant l'applicabilité de la théorie du film pour l'ébullition nucléée dans une large gamme de température d'ébullition pour des mélanges hydrocarbonés.

Dans cette section, nous allons expliciter les notions d'évaporation et d'ébullition en films tombants, et on finira par présenter les principales corrélations établies dans la littérature pour l'évaluation des coefficients de transferts thermiques en films tombants.

9.1 Evaporation de films tombants en régime laminaire non-nucléé : corrélations

Lors de l'écoulement avec un profil de vitesse pleinement développé d'un film tombant sur une surface chauffée, la température du liquide augmente et un profil de température s'établit entre la paroi chauffée et l'interface liquide/vapeur (Figure I .28).

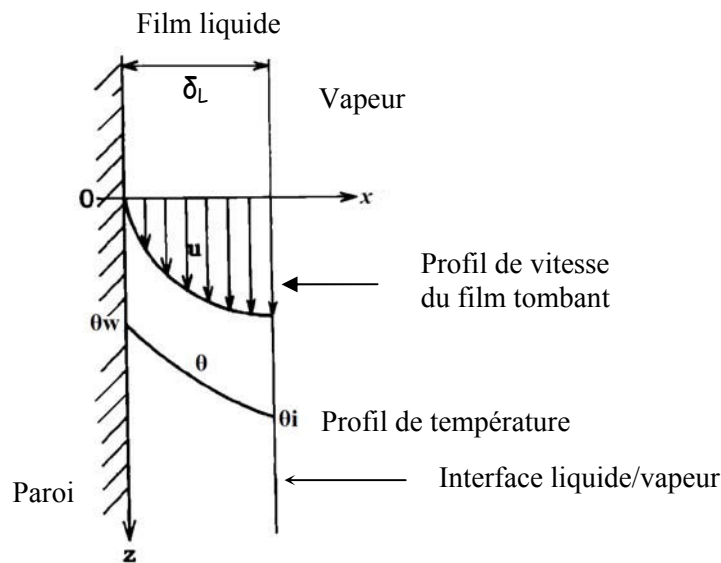


Figure I. 28: Représentation schématique de l'évaporation d'un film tombant laminaire

9.1.1 Théorie de Nusselt (1916) : Corrélation en régime laminaire

La première théorie abordant la question des films tombants liquides a été développée par Nusselt en 1916, bien que ses travaux aient concerné l'étude des films liquides. À ce jour, la plupart des corrélations décrivant la dynamique des fluides et les transferts de chaleur et de matière sont développées à partir de l'approche théorique de Nusselt.

En régime laminaire, la théorie de Nusselt suppose que la chaleur est transférée par conduction de la paroi chaude à l'interface liquide/vapeur où a lieu l'évaporation.

L'épaisseur du film est celle définie par Nusselt comme issue du bilan des forces visqueuses et gravitationnelles, Nusselt a obtenu l'expression suivante de l'épaisseur du film :

$$\delta_L = \left(\frac{3\mu_L^2}{4\rho_L^2 g} \right)^{1/3} Re_L^{1/3} \quad \text{Equation I- 37}$$

Le coefficient de transfert de chaleur en régime laminaire est donné par l'expression suivante :

$$h_L = \frac{\lambda_L}{\delta_L} \quad \text{Equation I- 38}$$

Généralement, dans un évaporateur à film tombant, les équations sont présentées sous forme adimensionnelle. Les corrélations sont de type Nusselt, on trouve le plus souvent dans la littérature : h_L^* à la place du nombre de Nusselt, où h_L^* est le coefficient de transfert de chaleur adimensionnel côté liquide.

Cependant, dans le cas d'un film tombant liquide, la dimension caractéristique est l'épaisseur du film δ_L à la place du diamètre hydraulique habituel (Yih, 1986) : $h_L^* = \frac{h_L \delta_L}{\lambda_L}$

Avec h_L : coefficient de transfert thermique,
 δ_L : épaisseur du film tombant,
 λ_L : conductivité thermique du liquide.

Les corrélations sont le plus souvent représentées sous forme adimensionnelle ($h_L^* = a Re^b Pr_L^c$). En remplaçant l'épaisseur du film par son expression de l'équation I.37, on obtient, suivant le raisonnement de Nusselt, la forme adimensionnelle suivante du coefficient de transfert de chaleur :

$$h_L^* = \frac{h_L}{\lambda_L} \frac{\mu_L^2}{\rho_L^2 g}^{1/3} = \frac{4}{3}^{1/3} Re_L^{1/3} = 1,1 Re_L^{1/3} \quad \text{Equation I- 39}$$

9.1.2 Corrélation de Chun et Seban en régime laminaire avec vaguelettes

Les travaux les plus remarquables en évaporation de films tombants sont ceux de Chun et Seban [1971] qui ont étudié l'évaporation d'un film tombant d'eau pure à l'extérieur d'un tube. Ils ont opéré avec des nombres de Reynolds compris 320 et 21000, ce qui leur a permis de travailler en régimes laminaire et turbulent.

En régime laminaire Chun et Seban montrent que l'existence de vaguelettes à la surface du film augmente le coefficient de transfert. Pour tenir compte de cet effet, ces derniers corrèlent de manière adimensionnelle leurs données de coefficient de transfert de chaleur en régime laminaire comme suit :

$$h_L^* = 0,606 \text{Re}_L^{0,22} \quad \text{Equation I- 40}$$

En régime laminaire, Fujita et Ueda ont obtenu des résultats environ 10% supérieurs à ceux de Chun et Seban et proposent la corrélation suivante :

$$h_L^* = 0,6634 \text{Re}_L^{0,22} \quad \text{Equation I- 41}$$

Enfin pour l'évaporation d'un film en régime turbulent sur un tube vertical, Chun et Seban proposent

$$h_L^* = 6,616 \cdot 10^{-3} \text{Re}_L^{0,4} \text{Pr}^{0,6} \quad \text{Equation I- 42}$$

Quant à Fujita et Ueda, ils proposent en régime turbulent

$$h_L^* = 0,0104 \text{Re}_L^{0,4} \quad \text{Equation I- 43}$$

D'autres corrélations pour le transfert de chaleur en film tombant ont été établies par de nombreux auteurs, leurs domaines de validité ainsi que leurs conditions expérimentales ont été résumés dans le tableau I.3. Ces corrélations sont également représentées sur la figure I.29.

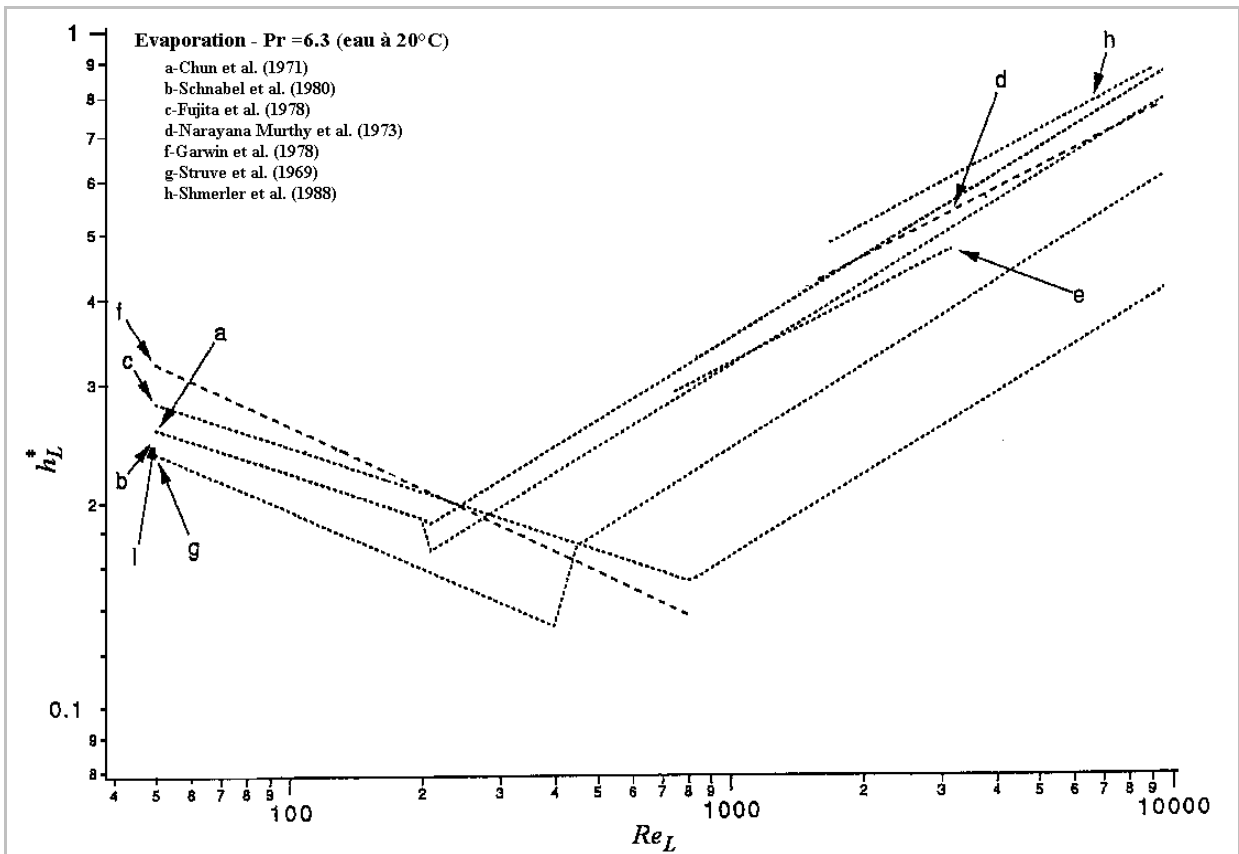


Figure I. 29 : Représentation du coefficient de transfert adimensionnel en fonction du nombre de Reynolds pour différentes corrélations dans le cas de l'évaporation de film tombant pour un nombre de Prandtl de 6,3 (eau à 20°C)

Auteurs	Corrélations	Domaine de validité	Remarques
Nusselt (1916)	$h_L^* = 1.1 Re_L^{-1/3}$	Régime laminaire et turbulent	Raisonnement théorique basée sur la théorie du film.
Chun et Seban (1971)	$h_L^* = 0.606 Re_L^{-0.22}$ $h_L^* = 6.616 \cdot 10^{-3} Re_L^{0.4} Pr^{0.6}$	$Re_L < Re_{crit}$ $Re_L > Re_{crit}$ avec $Re_{crit} = 0.0536 Ka^{-1/3}$	Evaporation de films tombants d'eau sur un tube chauffé. $320 < Re_L < 21000$. La température du film est comprise entre 28°C et 100°C.
Alhuseini <i>et al.</i> (1998)	$h_L^* = 2.13 Re_L^{-0.158} Ka_L^{0.0563}$	$34 < Re_L < 15600$ $Pr > 5$	La corrélation prend en compte les effets dus au nombre de Prandtl sur le coefficient de transfert de chaleur. Une large gamme de nombre de Prandtl a été expérimentalement explorée par les auteurs : $1,73 < Pr < 46,6$, mais la corrélation établie est intéressante uniquement à partir de $Pr > 5$
Schnabel et Schlunder (1980)	$h_{L_lam}^* = 0,69 Re_L^{1/3}$ $h_{L_turb}^* = 0,00622 Re_L^{0,4} Pr_L^{0,65}$ $h_L^* = \sqrt{(h_{L_lam}^*)^2 + (h_{L_turb}^*)^2}$	$Re_L < 100$ $Re_L > 800$ $100 < Re_L < 800$ $Pr_L < 7$	Liquide : eau ($2,3 < Pr_L < 6,3$) Plaque plane Source de chaleur : électrique
Fujita et Ueda (1978)	$h_L^* = 0,6634 Re_L^{0,22}$ $h_L^* = 0,0104 Re_L^{0,4}$	$Re_L < 800$ $Re_L \geq 800$ $0,3 \cdot 10^5 < q < 0,7 \cdot 10^5 W.m^{-2}$	Liquide : eau Source de chaleur : résistance électrique Ecoulement du film à l'extérieur du tube : Les auteurs ont étudiés le transfert de chaleur $q = 0,7 \cdot 10^5 W/m^2$. au-delà de cette valeur ils observent l'ébullition nucléée.
Struve (1969)	$h_L^* = 0,71 Re_L^{0,282}$ $h_L^* = 0,014 Re_L^{0,41}$	Laminaire ($Re_L < 300$ à 400) Turbulent	Liquide : R11 Source de chaleur : vapeur condensée Ecoulement du film à l'extérieur du tube
Shmerler et Mudawar (1988)	$h_L^* = 0,0062 Re_L^{0,35} Pr_L^{0,95}$	$1248 < Re_L < 9400$ $1,75 < Pr_L < 5,42$	Liquide : eau Source de chaleur : électrique Ecoulement du film à l'extérieur du tube

Garwin et Kelly (1955)	$h_L^* = 0,0196 Re_L^{1/3} Pr_L^{1/3}$	$725 < Re_L < 3200$ $Pr_L > 1$	Liquide : eau
Murthy et Sarma (1973)	$h_L^* = 0,0123 Re_L^{1/3} Pr_L^{1/3}$	Régime turbulent $Pr_L > 1$	Analyse théorique
Sarma, Jubouri et Murthy(1978)	$h_L^* = 1,08 Re_L^{0.31}$	Régime laminaire $Pr_L > 1$	Analyse théorique Écoulement supposé laminaire est sans vagues

Tableau I. 3: Corrélations pour l'évaluation du coefficient de transfert de chaleur en films tombants (évaporation sans ébullition)

9.2 Ebullition nucléée en films tombants: corrélations

Aux flux de chauffe élevés, l'ébullition nucléée peut apparaître lors de l'écoulement en films tombants. Il est souvent nécessaire d'éviter l'ébullition nucléée lors de l'évaporation en films tombants de produits alimentaires par exemple au risque d'altérer leur valeur nutritive et/ou leur activité vitaminique.

Un grand nombre de paramètres intervient dans le mécanisme d'ébullition nucléée à savoir : les propriétés du liquide, la présence éventuelle d'impuretés, les conditions de surface, la géométrie et le mode de chauffage.

Concernant l'influence de la géométrie, elle affecte le mécanisme de nucléation par l'intermédiaire de la structuration (tailles des micro-canaux), tandis que le mouvement des bulles affecte le transfert thermique. Les expériences en gravité réduite ou forcée montrent une influence non négligeable des forces volumiques.

Cerza (1985) a développé une méthode mécanistique expliquant le mécanisme d'ébullition nucléée en films tombants. Il stipule qu'au sein du film tombant, les bulles de vapeur se forment sur certains sites de la surface de chauffe, se détachent de leurs sites de nucléation et continuent à grossir au fur à mesure qu'elles tombent avec le film liquide pour finir par éclater à l'interface liquide/vapeur. Ce mécanisme est illustré sur la figure I.30. On peut remarquer sur cette même figure, qu'avant d'éclater, une bulle peut croître jusqu'à atteindre parfois une taille beaucoup plus grande que l'épaisseur du film tombant.

Le régime d'ébullition nucléée commence à des différences de température ($\Delta\theta$) ou flux de chauffe suffisamment élevés. On peut souvent le mettre en évidence visuellement. Cependant, dans notre cas, compte tenu de la compacité du micro-contacteur, il nous est impossible d'observer l'ébullition nucléée du film.

Fujita et Ueda (1978) présentent la corrélation suivante qui permet de calculer le coefficient de transfert de chaleur côté liquide (h_L) en fonction du flux de chaleur transmis au film ($q_{transf.}$) :

$$h_L = 1,24q_{transf}^{0,71}$$

Equation I- 44

Sous forme adimensionnelle on obtient :
$$h_L^* = 1,24q_{transf}^{0,71} \frac{\mu_L^2}{\rho_L^2 \lambda_L^3 g}^{1/3}$$

Cette corrélation est établie dans le cas de films tombants d'eau où le mécanisme de transfert thermique dominant est l'ébullition nucléée. Le coefficient de transfert de chaleur est indépendant du débit de liquide. Cette corrélation est valable quelque soit le régime d'écoulement, laminaire au turbulent.

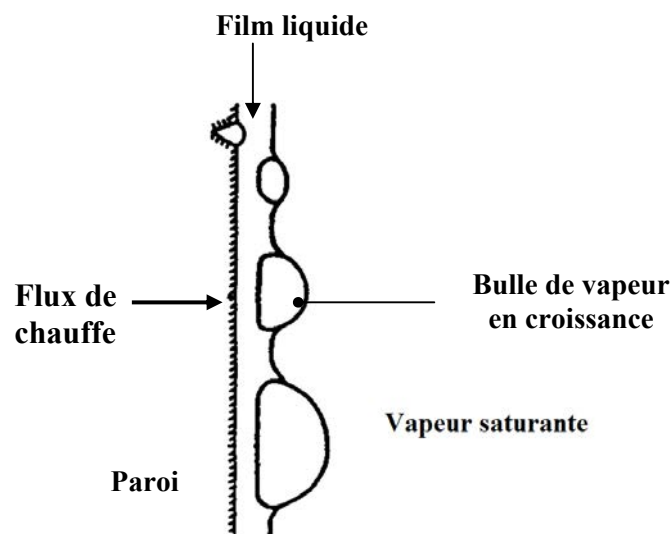


Figure I. 30: Représentation schématique de l'ébullition nucléée et la croissance des bulles dans un film tombant, Cerza (1985)

9.3 Transfert de chaleur de mélanges binaires en film tombant

Les évaporateurs à film tombants sont de plus en plus utilisés dans l'industrie chimique pour la séparation de mélanges multi-composants.

Il existe paradoxalement peu d'informations sur les mécanismes de transfert de chaleur et de matière, ce qui explique le peu de modèles prédictifs pour l'évaporation des mélanges binaires.

Dans leurs études, Palen *et al.* [1994] concluent que dans le cas d'un mélange où la différence de température d'ébullition entre composants est faible, l'effet du transfert de matière dans les processus de transfert de chaleur est moins important. A travers leurs mesures de coefficients de transferts de chaleur en évaporation de film tombant binaire, Palen *et al.* (1994) montrent que les coefficients de transfert de chaleur efficaces pour les mélanges peuvent être jusqu'à 80% plus faible que les coefficients de transferts évalués pour les composés purs dans les

mêmes conditions. Cela serait dû au transfert de masse à l'interface liquide/vapeur qui induit une élévation de la température de saturation.

Pour les mélanges binaires, les mécanismes de changement de phase sont complexes, ce qui rend plus difficile la prédiction des transferts de chaleur.

À l'heure actuelle, il existe peu de modèles traitant de l'évaporation en films tombants de mélanges binaires. En régime laminaire sans vagues, il est possible de déterminer une solution exacte pour des transferts couplés de chaleur et de matière en films tombants.

Hoke et Chen [1992] ont présenté une solution analytique faisant intervenir le coefficient de transfert de matière en régime laminaire sans vagues qui permet le calcul du coefficient de transfert de chaleur dans le cas de l'évaporation d'un mélange binaire.

Palen et al [1994] ont déterminé expérimentalement les coefficients de transfert de chaleur lors de l'évaporation d'un mélange binaire (eau/ éthylène glycol) et ont développé un modèle semi-empirique où les transferts de chaleur et de matière sont couplés, ce qui leur a permis de prédire le coefficient de transfert de chaleur avec un écart moyen d'environ 15%.

Une analyse des données expérimentales dans le cas de l'évaporation de mélanges multi-composants en films tombants et des corrélations s'y rapportant est présentée par Numrich (1996), celui-ci part des corrélations de Chun et Seban en régime turbulent et propose une forme modifiée pour l'évaporation de films tombants binaires, la corrélation proposée se présente comme suit :

$$h_L^* = 0,003 \text{Re}_L^{0,44} \text{Pr}_L^{0,4} \quad \text{Equation I- 45}$$

9.4 Apparition de zones sèches en film tombant

Aux flux de chauffe élevés ou aux faibles débits de liquide, des zones sèches peuvent apparaître. La fine épaisseur de film liquide permettant le transfert thermique se réduit progressivement du fait de l'entraînement du liquide par la vapeur et/ou par vaporisation, ceci peut conduire à une rupture du film tombant et provoquer l'assèchement partiel de la surface chauffée.

L'évaporation progressive d'un film de liquide s'écoulant sur une surface soumise à des flux de chauffe élevés produit des zones sèches qui peuvent réduire considérablement la transmission de la chaleur.

Fujita et Ueda (1976-1978) ont réalisé des expériences d'évaporation de films tombants d'eau à l'extérieur d'un tube vertical chauffée électriquement. L'observation des phénomènes d'ébullition aux flux de chauffe élevés ont permis aux auteurs de décrire la phénoménologie des zones sèches sur des surfaces verticales. La Figure I.31 représente les conditions d'assèchement en fonction des flux de chauffe imposés.

L'apparition de zones sèches dans la partie inférieure d'un tube vertical chauffé est due à la réduction de l'épaisseur du liquide elle-même due à l'évaporation et/ou à l'entraînement du film liquide tombant par la phase vapeur ascendante.

Une fois le film cassé, les zones sèches s'installent, ce qui accumule toute la chaleur à la paroi, la conséquence étant une augmentation rapide de la température à la paroi.

S'il venait au liquide à remouiller la surface, une forte ébullition se produit, provoquant ainsi une poussée violente du liquide à l'image de l'eau que l'on verserait sur une plaque de chauffe portée à température élevée.

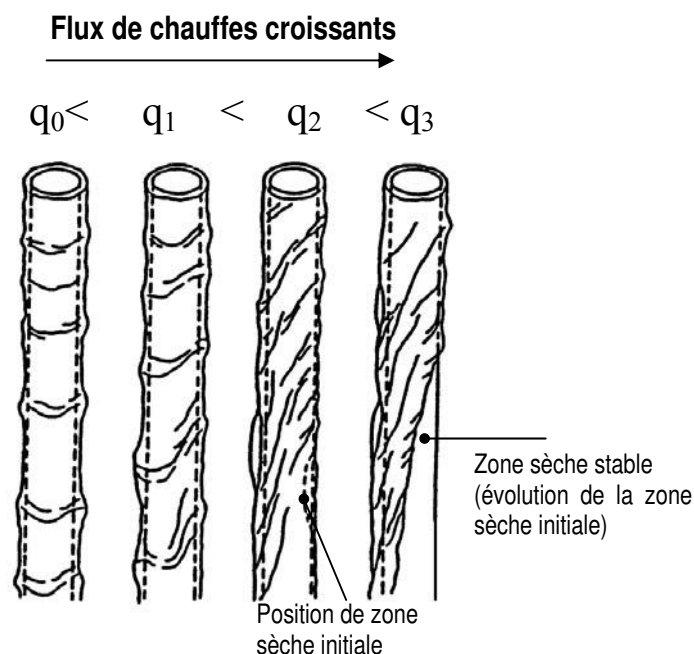


Figure I. 31 : Conditions d'apparition des zones sèches aux flux de chauffes élevés (Fujita et Ueda (1976-1978))

10. Transfert de chaleur en micro-canaux

À ce jour, il n'existe pas de méthode générale pour la description précise de tous les processus de transferts de chaleur en micro-canaux.

Kandlikar et Balasubramanian (2004) ont élaboré une corrélation générale adaptée aux mini-canaux. Leur corrélation donne de bons résultats, cependant cette dernière ne prend pas en compte des phénomènes de "zones sèches" susceptibles d'être observés en ébullition nucléée. Dans le cas de l'ébullition en micro-canaux, Tran *et al.* (1997) et Kew *et al.* (1997) ont établi des corrélations du coefficient de transfert thermique pour différents composés. Ces derniers ont conclu à l'issue de leurs études que le coefficient transfert de chaleur dépend exclusivement du flux de chaleur et qu'en conséquence, le mécanisme principal dominant est l'ébullition nucléée.

Les corrélations Kandlikar et Grande (2003) illustrent clairement l'évolution du coefficient de transfert thermique avec la qualité de vapeur (fraction massique de vapeur). Ces travaux indiquent que l'ébullition nucléée n'est peut être pas le seul mécanisme régissant le transfert de chaleur dans les mini-canaux.

Il est clairement identifié aux échelles micro-structurées que l'ébullition de la fine épaisseur de liquide, la croissance de bulles qui en découle ainsi que leurs interactions avec la paroi jouent un rôle décisif dans le transfert thermique. C'est ainsi que plusieurs mécanismes interviennent dans le processus d'ébullition dans les micro-canaux, à savoir : la tension de surface, la mouillabilité du support, le débit de liquide, mais également des effets de cisaillement film liquide/vapeur dans un écoulement à contre courant par exemple, cet effet de cisaillement associé à un écoulement laminaire avec vaguelettes peut fortement influencer les phénomènes de transfert thermiques.

Comme il a été décrit par de nombreux auteurs tels que Dupont *et al.* (2004) et Agostini *et al.* (2005), les régimes d'écoulement observés dans les mini et micro-canaux sont plus généralement l'écoulement annulaire et/ou l'écoulement annulaire avec entrainement de liquide.

Brutin *et al.* (2003) ont étudié les instabilités de l'écoulement diphasique dans un micro-canal. Ils ont observé la formation de bulles bloquant l'écoulement en le repoussant vers l'entrée, ils identifient alors un nombre de Reynolds seuil délimitant l'ébullition nucléée stable et l'ébullition nucléée instable (apparition de zones sèches). Les mêmes auteurs ont étudié les

phénomènes d'oscillation des débits liquide et vapeur observables lors de l'ébullition dans un canal étroit.

Pour une meilleure compréhension du comportement en ébullition dans les micro-canaux, des nombres adimensionnels comme le nombre d'ébullition (Bo) et le nombre de confinement (Co) sont introduits.

Le nombre d'ébullition (Bo) représente le rapport de la vitesse massique de la vapeur (q_{transf} / L_v) sur la vitesse massique totale.

Étant donné qu'il combine deux paramètres importants à savoir q_{transf} et \dot{m} , le nombre d'ébullition sera utilisé dans le traitement empirique et expérimental de l'ébullition.

$$Bo = \frac{q_{transf}}{\dot{m}L_v} \quad \text{Equation I- 46}$$

Avec $\dot{m} = F/S_l$ où F : débit massique d'alimentation et S_l : section de passage du fluide

Kew et Cornwell (1997) utilisent pour la première fois le nombre de confinement (Co), ce nombre tient compte de l'influence sur l'écoulement du confinement des bulles dû à la petite taille des canaux. Les auteurs ont identifiés que le transfert thermique et le régime d'écoulement sont tributaires de la valeur du nombre de confinement.

$$C_o = \left[\frac{\sigma}{g(\rho_L - \rho_V)D_h^2} \right]^{1/2} \quad \text{Equation I- 47}$$

En transfert de chaleur au sein de mini ou micro-canaux, les corrélations proposées par la littérature sont de types Nusselt, avec comme dimension caractéristique, le diamètre hydraulique du canal D_h (Kandlikar, 2006):

$$Nu = \frac{h_L D_h}{\lambda_L} \quad \text{Equation I- 48}$$

Avec h_L : coefficient de transfert thermique
 D_h : diamètre hydraulique du canal
 λ_L : conductivité thermique du liquide

10.1 Corrélations en monophasique liquide : corps pur (obtenues en microcanaux)

Peng et Wang (1993), ont étudié expérimentalement les caractéristiques thermiques de l'ébullition d'un liquide (eau) sous-refroidie dans des micro-canaux. Cette étude a été menée de manière qu'il n'y ait pas d'évaporation du liquide étudié.

Leurs travaux aboutissent à la corrélation suivante qui permet la prédiction des coefficients de transfert de chaleur :

$$Nu = 1,86 \frac{D_h}{w_c}^{1/3} \frac{\mu_L}{\mu_v}^{0,14} Re_L^{1/3} Pr_L^{1/3} \quad \text{Equation I- 49}$$

Wang et Peng (1994) poursuivent leurs travaux expérimentaux dans un dispositif similaire et proposent la corrélation suivante :

$$Nu = 0,00805 Re_L^{0,8} Pr_L^{1/3} \quad \text{Equation I- 50}$$

Peng et Peterson [1995-1996] ont étudié le transfert de chaleur en micro-canaux pour le cas de l'eau. Cette étude a révélé que l'écoulement des fluides ainsi que le transfert de chaleur en micro-canaux sont différents de ceux qui se produisent dans les grands circuits ou tubes conventionnels. Leurs données expérimentales en régime laminaire ont été corrélées comme suit:

$$Nu = 0,1165 \frac{D_h}{s_c + w_c}^{0,81} \frac{dc}{w_c}^{0,79} Re_L^{0,62} Pr_L^{0,33} \quad \text{Equation I- 51}$$

Les travaux en monophasique ont permis aux auteurs précédemment cités, de mieux caractériser l'influence de la structuration sur les processus de transferts thermiques en micro-canaux. Bien que leur formalisme n'interdise pas leur utilisation, ces corrélations ne seront pas utilisées dans notre d'étude puisque nous sommes en présence de changement de phase lors de l'ébullition. Ces corrélations sont consignées dans le tableau I.4.

	Auteurs -année	Corrélations	Régimes de transfert de chaleur observés	Conditions expérimentales et domaine de validité. Commentaires.
Transfert de chaleur monophasique	Peng et Wang [1993]	$Nu = 1,86 \frac{D_h}{w_c} \frac{\mu_L}{\mu_v}^{0,14} Re_L^{1/3} Pr_L^{1/3}$	Echauffement du liquide sans changement de phase.	D_h (mm) : 0,31- 0,75, Fluide : eau et méthanol, $Re_L < 1000$ régime laminaire q (kW/m ²) : $10^3 - 10^5$ Les auteurs observent une forte augmentation des flux de chaleur avec la température à la paroi.
	Wang et Peng [1994]	$Nu = 0,00805 Re_L^{0,8} Pr_L^{1/3}$	Expériences de transfert de chaleur en convection forcée.	Mêmes conditions que Peng et Wang [1993]. Le transfert de chaleur augmente avec une diminution de la température du liquide et avec une réduction de la vitesse d'écoulement de celui-ci.
	Peng et Peterson [1996]	$Nu = 0,1165 \frac{D_h}{s_c + w_c}^{0,81} \frac{dc}{w_c}^{0,79} Re_L^{0,62} Pr_L^{0,33}$	Expériences en monophasique (écoulement laminaire et turbulent), la corrélation en laminaire est présentée ici.	D_h (mm): 0,13 – 0,34, Fluide : eau $Re_L < 200$, q : Inconnu La configuration géométrique du micro-canal a un effet important sur le transfert de chaleur monophasique

Tableau I. 4 : Quelques corrélations de transferts de chaleur de types Nusselt en micro-canaux (monophasique)

10.2 Corrélations sur l'ébullition en micro-canaux

Afin de développer une corrélation générale pour l'écoulement diphasique, Kandlikar (1990) a utilisé une importante base de données expérimentales (plus de 5000 points expérimentaux, 24 travaux de différents auteurs et sur une dizaine de fluides). La corrélation obtenue se présente comme suit:

$$Nu = C_1 C_0^{C_2} (25 Fr_L)^{C_5} + C_3 Bo^{C_4} F_L \quad \text{Equation I- 52}$$

C_1 à C_5 sont des constantes empiriques dépendantes de la nature du fluide et du régime d'ébullition (convection ou l'ébullition nucléée voir réf. (Kandlikar (1990))), leurs valeurs sont consignées dans le tableau I.5.

C_0 , Fr_L et Bo sont respectivement le nombre de confinement, le nombre de Froude du liquide et le nombre d'ébullition. F_L représente le paramètre fluide/surface, la valeur de ce paramètre est de 1 dans le cas de l'eau [Kandlikar (2006)].

Kandlikar (1990) identifie, selon la valeur du nombre de confinement (C_0) deux régions de transfert thermique : la région d'ébullition convective et la région d'ébullition nucléée.

$C_0 < 0,65$: Ébullition convective

$C_0 > 0,65$: Ébullition nucléée

Kandlikar justifie la subdivision en ces deux zones de transfert thermique du fait d'une certaine discontinuité des résultats à $C_0 = 0,65$

	Région convective $C_0 < 0,65$	Ebullition nucléée $C_0 \geq 0,65$
C_1	1,130	0,6683
C_2	-0,9	-0,2
C_3	667,2	1058
C_4	0,7	0,7
C_5	0,3	0,3

Tableau I. 5: Constantes empiriques de la corrélation de Kandlikar (équation I.52). Kandlikar (1990).

L'avantage principal de cette corrélation est qu'elle traduit la continuité qui existe entre les régimes de convection et d'ébullition nucléée.

Récemment, Kandlikar (2004) a proposé une autre corrélation pour les écoulements laminaires, notamment pour $Re_L < 100$. Il présente l'évolution du coefficient de transfert de chaleur comme suit :

$$h_{TP} = 0,6683C_o^{0,2}(1-x)^{0,8}h_L + 1058Bo^{0,7}(1-x)^{0,8}F_Lh_L \quad \text{Equation I- 53}$$

Avec, h_{TP} : le coefficient de transfert de chaleur en diphasique (liquide/vapeur)

et $h_L = \frac{\lambda_L Nu_L}{D_h}$: le coefficient de transfert de chaleur en échauffement.

Tran et Al. [2000] ont proposé la relation suivante qui permet de calculer le nombre de Nusselt :

$$Nu = 770.(Bo.Re_L.(1-x)C_o)^{0,62} \cdot \frac{\rho_v}{\rho_L} \frac{\lambda_L}{D_h} \quad \text{Equation I- 54}$$

Black et Lazareck [1982] proposent la relation suivante dans le cas de l'ébullition nucléée

$$Nu = 30.Re_L^{0,857}.Bo^{0,714} \quad \text{Equation I- 55}$$

Cette dernière relation a ensuite été modifiée par Kew et Cornwell [1997] afin de tenir compte de la qualité de la vapeur :

$$Nu = 30.Re_L^{0,857}.Bo^{0,714}(1-x)^{0,143} \quad \text{Equation I- 56}$$

Il faut noter que la plupart des corrélations existantes ont été développées en premier pour des micro-tubes circulaires pour ensuite être adaptées à l'étude des micro-canaux. Elles peuvent être appliquées directement aux micro-canaux rectangulaires fermés car les quatre parois constituant un micro-canal sont susceptibles de transférer la chaleur au liquide.

Cependant, comme pour la plupart des micro-canaux fermés, la paroi de base est généralement adiabatique. Afin de tenir compte de cette différence particulière, un facteur de correction est introduit, ce qui permet de réécrire le coefficient de transfert comme suit :

$$h_L = h_{L,cor} \frac{Nu_3}{Nu_4} \quad \text{Equation I- 57}$$

Nu_3 et Nu_4 sont les nombres de Nusselt monophasique (sans changement de phase) en régime laminaire développé pour des conditions de transferts de chaleurs avec 3 et 4 parois respectivement d'où les indices associés.

Ce type de raisonnement a conduit à des formes de corrélations dont celle de Yu *et al.* [2002] exprimée comme suit :

$$h_L = \frac{Nu_3}{Nu_4} 6,410^6 (Bo^2 We_L)^{0,24} \frac{v_V}{v_L}^{0,2} \quad \text{Equation I- 58}$$

En première approximation le rapport $\frac{Nu_3}{Nu_4}$ est égal à 1, ce qui a permis de réécrire le coefficient de transfert comme suit :

$$h_L = 6,410^6 (Bo^2 We_L)^{0,24} \frac{v_V}{v_L}^{0,2} \quad \text{Equation I- 59}$$

Bromley (1950) a utilisé l'approche de Nusselt pour la condensation de film pour prédire dans la région d'ébullition en film, le coefficient de transfert thermique au sein de phase vapeur sur un tube horizontal comme suit:

$$h_G(z) = \left(\frac{\Delta H_{vap} \rho_V (\rho_L - \rho_V) g \lambda_V}{16 \eta_V (\theta_p - \theta_s)} \frac{1}{z} \right)^{1/4} \quad \text{Equation I- 60}$$

Le coefficient de transfert de chaleur moyen peut être calculé selon l'équation suivante:

$$\overline{h_V} = \frac{1}{L} \int_0^L h_V(z) dz \quad \text{Equation I- 61}$$

Le coefficient de transfert thermique sur une plaque plane verticale, comme c'est le cas dans cette présente étude, peut être également évalué avec cette approche.

En régime laminaire, d'après Thome *et al.* 2004, la corrélation de Shah et London peut être utilisée pour évaluer le nombre de Nusselt local :

$$Nu(z) = 0,455 (Pr)^{1/3} \sqrt{\frac{Dh Re_L}{L(z)}} \quad \text{Equation I- 62}$$

Quelques corrélations pour l'évaluation du coefficient de transfert thermique dans les micro-canaux sont sélectionnées et résumées dans le tableau I.6.

	Auteurs -année	Corrélations	Régimes de transfert de chaleur observés	Conditions expérimentales et domaine de validité. Commentaires.
Ebullition en micro-canaux	Tran <i>et al.</i> [2000]	$Nu = 770.(Bo.Re_L.(1-x)C_0)^{0,62} \cdot \frac{\rho_v}{\rho_L}$	Ebullition nucléée et convection forcée	D_h : 2,46 mm, Fluide : R134a, \dot{m} (kg.m ⁻² .s ⁻¹): 92- 476, Re_L = 345–2906 q (kW/m ²): 7,9 – 49,8 ΔT_{sat} (K) :2,8-7,1 Pertes de charges élevées observées lors de l'ébullition en micro-canaux : comportement attribué aux frictions des bulles au sein des micro-canaux.
	Black et Lazareck [1982]	$Nu = 30.Re_L^{0,857} .Bo^{0,714}$	Ebullition nucléée	D_h : 3,15 mm, Fluide :R113 $Co \sim 0.6$ $Re_L = 57-340$ coefficient de transfert thermique, la perte de charge et le flux thermique ont été mesurés pour un liquide en ébullition saturé.
	Kew et Cornwell [1997]	$Nu = 30.Re_L^{0,857} .Bo^{0,714} (1-x)^{0,143}$	Ebullition nucléée, apparition de zones sèches	Ebullition d'un fluide frigorigène dans mini-canaux circulaires et verticaux. D_h (mm): 1,39 – 3,69, Fluide : R141b, \dot{m} (kg.m ⁻² .s ⁻¹): 188-1480, $Re_L = 1373-5236$ q (kW/m ²) : 10-100 Identification de trois régimes d'écoulement: Bulles isolées, bulles confinées, et un régime d'écoulement annulaire, un assèchement partiel dans certaines conditions est observé.
	Kandlikar [1990]	$Nu = C_1 C_0^{C_2} (25 Fr_L)^{C_5} + C_3 Bo^{C_4} Fr_L$	Ebullition nucléée et convection forcée	La corrélation donne de meilleures prédictions pour $Re_L > 200$. Elle est développée pour le cas de l'ébullition de liquides saturés.

Tableau I. 6: Quelques corrélations de transferts de chaleur de types Nusselt en micro-canaux

10.3 Ebullition de mélanges binaires en micro-canaux

Beaucoup de travaux ont été rapportés dans la littérature dans le cas de l'ébullition de liquides purs en micro-canaux. Il existe cependant un nombre limité d'études faites en ébullition de mélanges binaires en mini et micro canaux. La principale raison étant peut-être la complexité des phénomènes d'ébullition de mélanges binaires dans les systèmes miniaturisés.

Par comparaison avec l'ébullition de liquides purs en micro-canaux, l'étude de l'ébullition de mélanges binaires dans les micro-canaux est plutôt rare.

Peng *et al.* (1996) et Wang et Peng (1994) ont étudié expérimentalement l'ébullition d'un mélange binaire eau/méthanol, les canaux sont orientés horizontalement, le diamètre hydraulique varie de 0,133 à 0,343 mm.

Les mêmes auteurs ont étudiés l'influence du titre du composé le plus volatil sur le coefficient de transfert de chaleur. Ils ont démontré que la composition du mélange a une influence significative sur l'ébullition.

Peng *et al.* (1996) et Wang et Peng (1998) ont montré que les mélanges avec de faibles concentrations en composé le plus volatil augmentent le transfert de chaleur, tandis que ceux avec des concentrations élevées en composé le plus volatil diminuent le transfert de chaleur.

Pour un mélange binaire, ils évaluent le coefficient de transfert thermique coté liquide avec l'équation suivante :

$$h_L = \frac{q_{transf.}}{\theta_p - \theta_{éb.}} \quad \text{Equation I- 63}$$

Avec : θ_p : température à la paroi,

$\theta_{éb.}$: température d'ébullition du mélange binaire,

$q_{transf.}$: densité de flux de chaleur transféré au liquide binaire.

Aujourd'hui, la plupart des corrélations appliquées dans le cas de l'ébullition de mélanges binaires en micro-canaux proviennent d'études de mélanges de réfrigérants dans des tubes capillaires [Celata, 1993], [Greco (2005a-2005b)].

Gréco (2005b) affirme que la corrélation de Kandlikar (1990) établie à l'équation I.47 prédit le mieux leurs données expérimentales.

Conclusion

Le concept de films tombants associé à la micro-structuration s'avère donc être une nouvelle approche judicieuse pour intensifier le phénomène de transfert thermique et de matière dans les microsystèmes.

Ce qui laisse penser que l'étude de la séparation de mélanges binaires par évaporation dans le micro-contacteur à films tombants est intéressante.

Ceci est particulièrement motivé par une étude menée par Hessel *et al* (2008) [21] et faisant l'état de l'art des micro-procédés par le biais de l'analyse du nombre de brevets déposés dans les domaines des micro-mélangeurs, microréacteurs et micro-séparateurs. Cette étude montre clairement que les micro-séparateurs sont laissés en marge. La principale raison étant que le développement des micro-séparateurs est très récent, et très peu de brevets existent donc à ce sujet.

Les chapitres suivants permettront d'étudier en détails les aspects de transferts thermiques et de matière en micro-canaux. La particularité du transfert thermique en régime d'ébullition sera aussi traitée.

Enfin il sera question des phénomènes de transferts couplés, de matière et de chaleur dans le cas d'un mélange binaire.

Chapitre II : Matériel et Méthodes

Introduction

Le micro-contacteur à film tombant étudié dans ce travail a été fabriqué à l'atelier de mécanique du LRGP-CNRS de Nancy. La première partie de ce chapitre est dédiée à sa présentation.

La première étape de ce travail a été la conception d'un micro-contacteur à l'image d'un évaporateur suivant la technologie des films tombants.

Sa méthode de fabrication a fait appel, d'une part à la technologie des films tombants et d'autre part aux techniques de micro-usinage des matériaux.

La deuxième partie est consacrée à la description détaillée du dispositif expérimental (périphéries du micro-contacteur), à la présentation des produits étudiés, aux incertitudes sur les mesures, à la reproductibilité des expériences, à l'étalonnage des thermocouples, ainsi qu'à la présentation des méthodes analytiques de chromatographique en phase gazeuse adoptées pour l'analyse des échantillons dans le cas de l'étude de faisabilité de la distillation de mélanges binaires.

Ce dispositif a permis, la mesure expérimentale du coefficient de transfert de chaleur h dans des conditions connues et reproductibles et l'étude de la faisabilité expérimentale de la distillation d'un mélange binaire test d'éthanol et de n-propanol.

1. Construction et description du micro-contacteur à films tombants

Le micro-contacteur à films tombants est constitué de plusieurs pièces imbriquées les unes dans les autres, fabriquées essentiellement à partir de laiton (pour les plaques structurées) et pour certaines parties du Téflon[®] renforcé en verre notamment pour la pièce d'espacement.

Le dispositif expérimental a été conçu pour l'étude de l'évaporation en films tombants d'un corps pur test (éthanol pur) ou d'un mélange binaire test (éthanol/n-propanol). Le support principal est le micro-contacteur à film tombant dont les détails sont présentés sur la figure II.1 et est illustré par la figure II.2.

Le micro-contacteur est constitué de deux plaques en laiton structurées (18 centimètres de longueur, 9 centimètres de large et 2 millimètres d'épaisseur). Les plaques sont conçues avec des micro-canaux usinés verticalement, l'objectif de ces derniers est d'empêcher la rupture du film liquide aux faibles débits comme cela a été étudié dans des systèmes similaires [Hessel *et al.*, 2005].

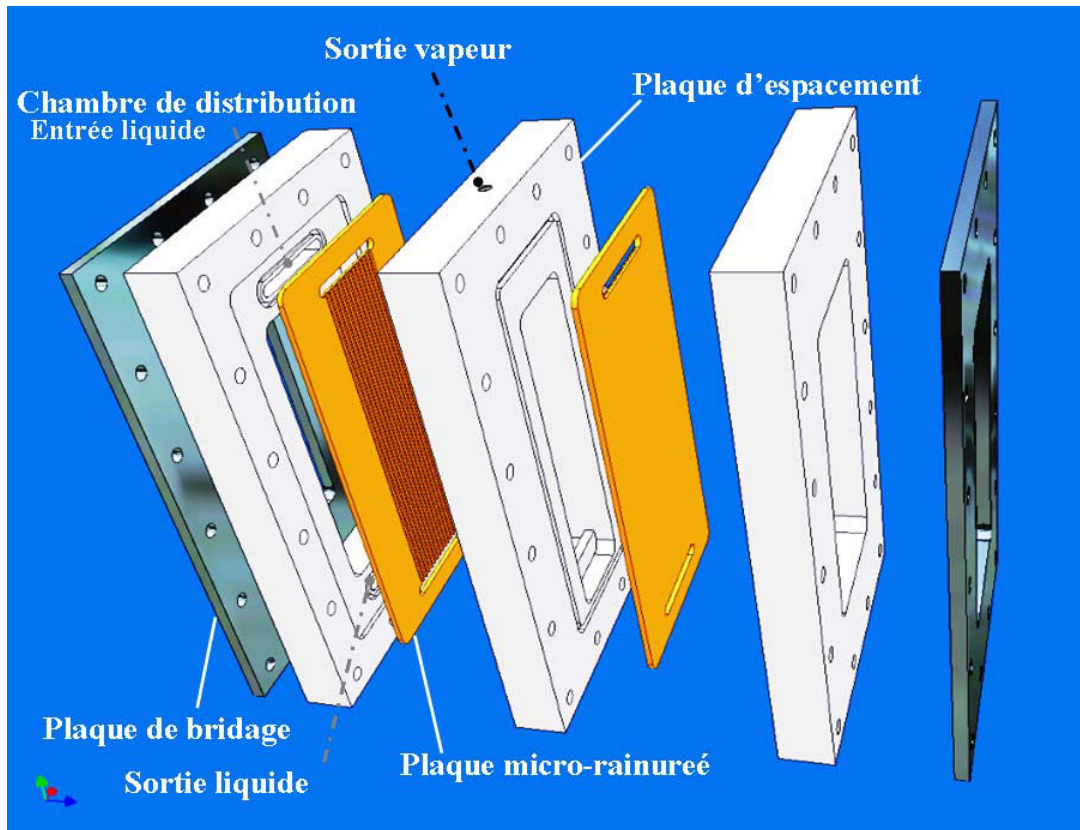


Figure II. 1: Vue éclatée du micro-contacteur à film tombant

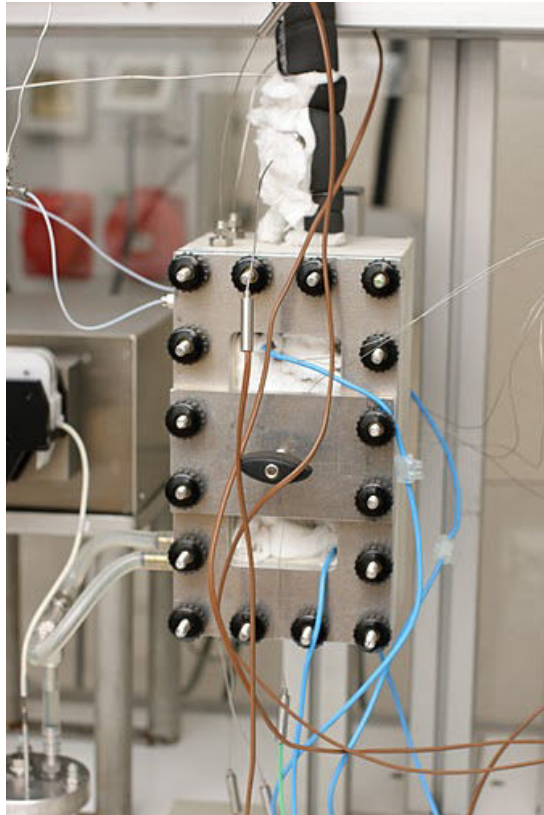


Figure II. 2: Photographie du microcontacteur à film tombant

Les deux plaques sont séparées par une plaque d'espacement creuse (20 millimètres d'épaisseur) en Téflon[®] renforcée à hauteur de 25% en verre.

Dans son état naturel, le Téflon[®] est un matériau léger et peu résistant aux contraintes mécaniques. Le renforcement en verre permet d'obtenir une matrice plus résistante aux compressions dues du serrage lors du montage des différents éléments constituant le micro-contacteur.

En outre, le Téflon[®] possède des propriétés remarquables qui le distinguent des autres polymères thermoplastiques, notamment une excellente résistance thermique et chimique.

La chambre de vapeur ainsi que les blocs supportant les plaques sont constituées en Téflon[®] renforcé en verre.

Enfin une résistance de chauffe est collée sur chaque plaque micro-rainurée. L'ensemble est serré par deux plaques de bridage.

Afin de réduire au minimum les déperditions thermiques, le micro-contacteur ainsi que les éléments associés sont isolés thermiquement avec de la laine de verre. Le Téflon[®] (principal matériau constituant le distributeur, la plaque d'espacement ainsi que le bloc de support des plaques) agit également en tant que bon isolant thermique.

1.1 Usinage des micro-canaux

L'usinage par fraisage a été choisi car plus approprié pour les niveaux de finitions et les états de surfaces souhaités dans cette étude. Différentes plaques ont été usinées avec des canaux rectangulaires de différentes géométries. Le tableau II.1 ci-dessous résume la gamme de taille des micro-canaux des quatre différentes plaques utilisées.

n° plaque [-]	1-4
Profondeur (µm)	100-200
largeur (µm)	300-2000
Diamètre hydraulique (µm)	150-365

Tableau II. 1: Résumé de la gamme de tailles de micro-canaux des quatre différentes plaques utilisées

La fraiseuse utilisée est à commande numérique et est équipée d'une tête à haute fréquence de type Nakanishi (HES 510). Cette dernière a l'avantage de limiter les vibrations lors de l'usinage et d'offrir une meilleure finition des pièces. Elle opère à des vitesses de rotations comprises entre 10 000 trs/min et 50 000 trs/min. La vitesse de rotation varie selon la nature de la fraise et de la résistance du matériau à usiner. Dans notre cas, les pièces à usiner sont en laiton, celui-ci étant classé comme matériau tendre. La vitesse de rotation adoptée lors de l'usinage est d'environ 40 000 trs/min. Il est important de lubrifier le matériau pendant l'usinage afin de limiter l'échauffement du matériau mais aussi le dégagement des copeaux formés à mesure que la pièce avance. Les fraises utilisées sont en carbure de tungstène.

1.2 Classification des micro-canaux

Lors des deux dernières décennies, les thermiciens ont adopté une nouvelle approche pour aborder les défis posés par les systèmes utilisant ou produisant des flux de chauffés élevés: "Le transfert thermique dans les microsystèmes".

La maîtrise croissante des techniques de micro-fabrication a permis la conception de systèmes avec des dimensions milli et submillimétriques. Ceci s'est traduit tout d'abord par le développement des micro-échangeurs de chaleur, des microsystèmes électromécaniques, de la micro-électronique puis, plus récemment des microréacteurs et des micro-procédés.

Pour une meilleure compréhension des phénomènes de transferts thermiques et de matière, une différenciation par le biais de classements entre les échelles de microsystèmes s'impose.

Sur la base des différences de tailles entre les canaux, Kandlikar et Grande (2003) ont proposé la classification suivante :

- Micro-canaux: $D_h = 10\ \mu m - 200\ \mu m$,
- Mini canaux: $D_h = 200\ \mu m - 3\ mm$,
- Canaux conventionnels: $D_h > 3\ mm$.

Dans ce travail, les plaques conçues ont des canaux de diamètres hydrauliques compris entre 0.15mm et 0.365mm. Compte tenu de la classification de Kandlikar et Grande (2003), ces canaux se situent dans la gamme des mini-canaux.

Toutefois, même si les canaux étudiés dans cette thèse sont de l'ordre du "mini", la terminologie "micro" sera adoptée. Et cela pour des considérations de méthodes de fabrication, car la microtechnique et la mécanique de précision interviennent dans la fabrication du contacteur à films tombants.

Pour les mêmes raisons, le terme "micro-contacteur" sera retenu tout au long de ce travail.

1.3 Présentation et caractérisation des plaques

Peng *et al.* (1996) ont montré que les parois séparant les micro-canaux entre eux ont le potentiel d'augmenter significativement le chauffage liquide.

Les paramètres géométriques des plaques en laiton micro-structurées sont donnés dans le tableau II.2.

La figure II.3 montre les détails de la plaque micro-rainurée. Quatre plaques ont été usinées dans le cadre de cette étude, chacune d'elles comporte sur une de ses faces n_c micro-canaux longitudinaux de largeur w_c et de profondeur d_c .

Ces canaux sont réalisés par micro-fraisage et ont des parois rectangulaires (le calcul du diamètre hydraulique D_h tient compte de cette particularité).

Chaque plaque comporte à ses extrémités deux fentes permettant la distribution et l'évacuation du film liquide.

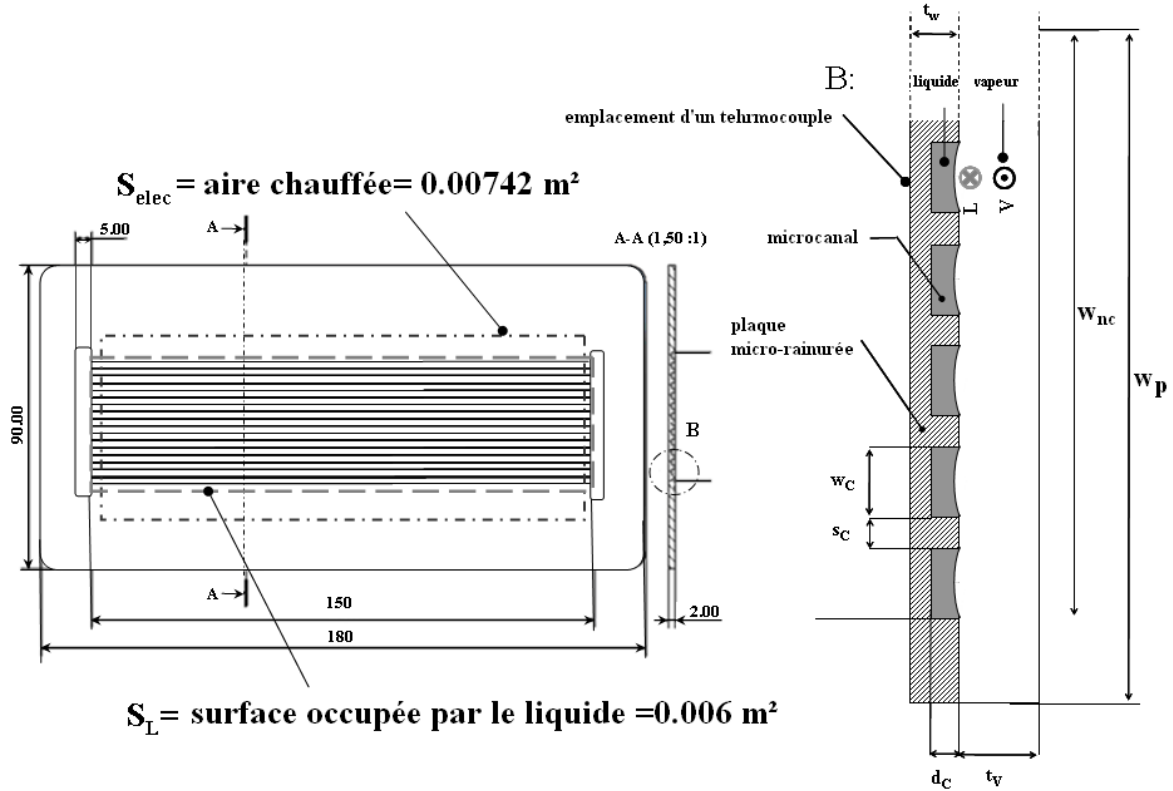


Figure II. 3: Détails et vue de profil de la plaque micro-rainurée

1.3.1 Evaluation des aires de transferts

1.3.1.1 Aire interfaciale spécifique de transfert de matière

L'aire interfaciale spécifique de transfert de matière (exprimée en m^2/m^3) a été définie comme la surface de contact liquide/vapeur rapporté au volume du contacteur [Roustan, 2003]. Elle peut être définie par l'expression suivante :

$$a_{L/V} = \frac{S_{L/V}}{V} \quad \text{Equation II- 1}$$

V correspond ici au volume du contacteur (somme du volume de liquide et du volume occupée par la veine vapeur), S est la surface libre de l'écoulement liquide dans les canaux ouverts. Sa valeur est déterminée en utilisant les dimensions caractéristiques de la plaque micro-structurée et l'épaisseur la veine vapeur (t_v), l'expression est de la forme suivante:

$$a_{L/V} = 2 \frac{n_c w_c Z}{t_v w_{nc} Z} = 2 \frac{n_c w_c}{t_v w_{nc}} \quad \text{Equation II- 2}$$

Le facteur 2 correspond à la présence des deux plaques symétriques. Les valeurs d'aire interfaciale spécifique au transfert de matière des différentes plaques sont consignées dans le tableau II.2.

1.3.1.2 Aire interfaciale spécifique de transfert thermique

Il est important dans les systèmes où des transferts thermiques ont lieu, de préciser que l'aire spécifique de transfert thermique est différente de l'aire spécifique au transfert de matière car les parois latérales des canaux jouent le rôle d'ailettes thermiques lors du transfert de chaleur entre le liquide et la paroi chauffée [Grimley *et al.* 1988, Peng *et al.* 1996].

L'aire interfaciale spécifique au transfert de transfert thermique (exprimée en m^2/m^3) a été introduite comme étant le rapport de la surface de contact entre le liquide et la surface interne des canaux (pour un canal, il s'agit de la somme de la surface de base et des deux surfaces latérales) sur de volume du contacteur.

L'aire interfaciale de transfert thermique est donc définie comme suit:

$$a_{thermique} = \frac{S_{thermique}}{V} = 2 \frac{(n_c Z w_c + 2n_c Z d_c)}{t_V w_{nc} Z} = \frac{2n_c (w_c + 2d_c)}{t_V w_{nc}} \quad \text{Equation II- 3}$$

Les valeurs d'aire interfaciale spécifique au transfert thermique pour chaque plaque utilisée dans cette étude sont consignées dans le tableau II.2.

Au vue des valeurs d'aires spécifiques calculées (de transfert de matière et de transfert thermique), il apparaît qu'en changeant les caractéristiques géométriques des plaques, plus précisément la largeur des canaux ou leurs profondeurs, il est possible d'influer sur la manière dont s'effectue les transferts de chaleur et de matière. Cet aspect particulier de la micro-structuration des plaques sera vérifié expérimentalement.

Grandeur	Symbole	Unités	Plaque n°			
			1	2	3	4
Largeur de la plaque	w_P	[mm]	90	90	90	90
Largeur occupée par les canaux	w_{n_c}	[mm]	40	40	40	40
Largeur d'un canal	w_C	[μm]	300	500	1000	2000
Profondeur d'un canal	d_C	[μm]	100	150	200	200
Rapport largeur d'un canal/profondeur d'un canal	w_C/d_C	[-]	3	3,33	5	10
Espace entre deux canaux	s_C	[μm]	200	200	100	100
Nombre de canaux	n_C	[-]	80	57	36	19
Epaisseur de la plaque	t_W	[mm]	2	2	2	2
Epaisseur de la veine vapeur	t_V	[mm]	20	20	20	20
Longueur d'une rainure verticale	Z	[mm]	150	150	150	150
Diamètre hydraulique	D_h	μm	150	231	333	364
Conductivité thermique du laiton	λ_{laiton}	[$W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$]	188	188	188	188
Aire interfaciale spécifique de transfert de matière	$a_{V/L}$	[m^2/m^3]	60	71	90	95
Aire interfaciale spécifique de transfert thermique	$a_{thermique}$	[m^2/m^3]	100	114	126	114

Tableau II. 2: Paramètres géométriques des plaques micro-rainurées en laiton

Le fait d'augmenter la largeur des canaux permet d'accroître l'aire interfaciale spécifique de transfert de matière, le même comportement est également observé pour l'aire interfaciale de transfert thermique, mais les valeurs de cette dernière ont tendance à diminuer aux largeurs de canaux élevées (Figure II.4) :

En effet, pour la même profondeur de canal (entre les plaques n°3 et n°4), $a_{thermique}$ passe de $126m^{-1}$ à $114 m^{-1}$ si la largeur du canal augmente de $1000\mu m$ à $2000 \mu m$.

Tout se passe comme si, plus le rapport w_C/d_C augmente, plus les micro-canaux s'aplatissent et la plaque tend vers une plaque lisse, ceci pourrait expliquer la chute de l'aire interfaciale de transfert thermique de 126 à $114m^{-1}$ pour un rapport géométrique $w_C/d_C=10$.

Le rapport largeur/profondeur est donc un paramètre important pour le développement d'un tel contacteur.

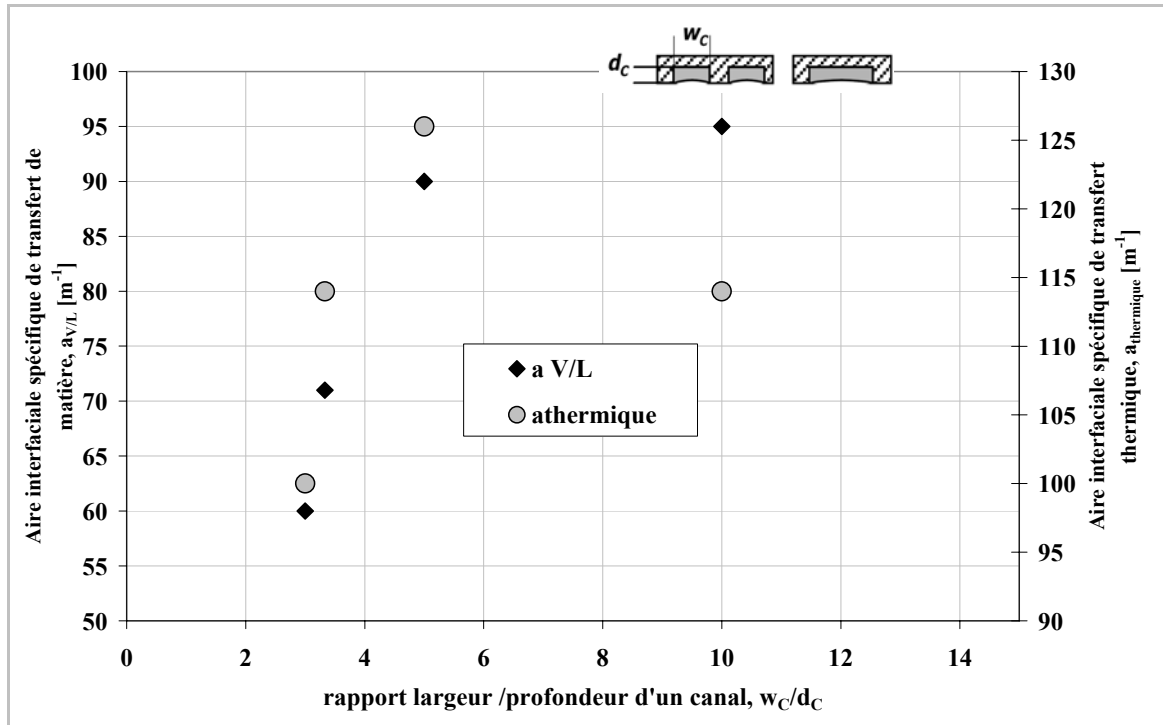


Figure II. 4: Mise en évidence de l’effet d’ailettes : Evolution de $a_{V/L}$ et $a_{thermique}$ en fonction de la largeur des canaux.

1.3.1.3 Débit volumique de mouillage

Afin de montrer l’intérêt de structurer la plaque, il serait intéressant de savoir, pour une épaisseur de film connue, quel est le débit volumique de liquide correspondant.

Pour les différentes plaques dont on dispose dans cette étude, on a effectué le calcul du débit volumique correspondant à une épaisseur donnée. Ces valeurs de débits sont comparées au débit qui serait obtenu pour une plaque lisse non-structurée ayant les mêmes caractéristiques à la différence des paramètres géométriques ($d_c = 0, s_c = 0, w_c = 40mm$, w_c étant la largeur maximale que peut prendre un canal sur la plaque).

La relation de Hessel (1999) (équation I-21) permet d’exprimer pour une plaque donnée, l’évolution du débit en fonction de l’épaisseur, l’expression obtenue se présente comme suit :

$$V = \delta_L^3 \cdot \frac{\rho w_c n_c g}{3\mu_L} \quad \text{Equation II-4}$$

La figure I.5 montre pour une plaque donnée, l'évolution du débit volumique en fonction de l'épaisseur imposée, on peut remarquer que le débit varie de manière exponentielle en fonction de l'épaisseur du film.

On peut aussi remarquer que pour une épaisseur de film donné, le débit à imposer est plus important pour une plaque lisse que pour une plaque micro-structurée.

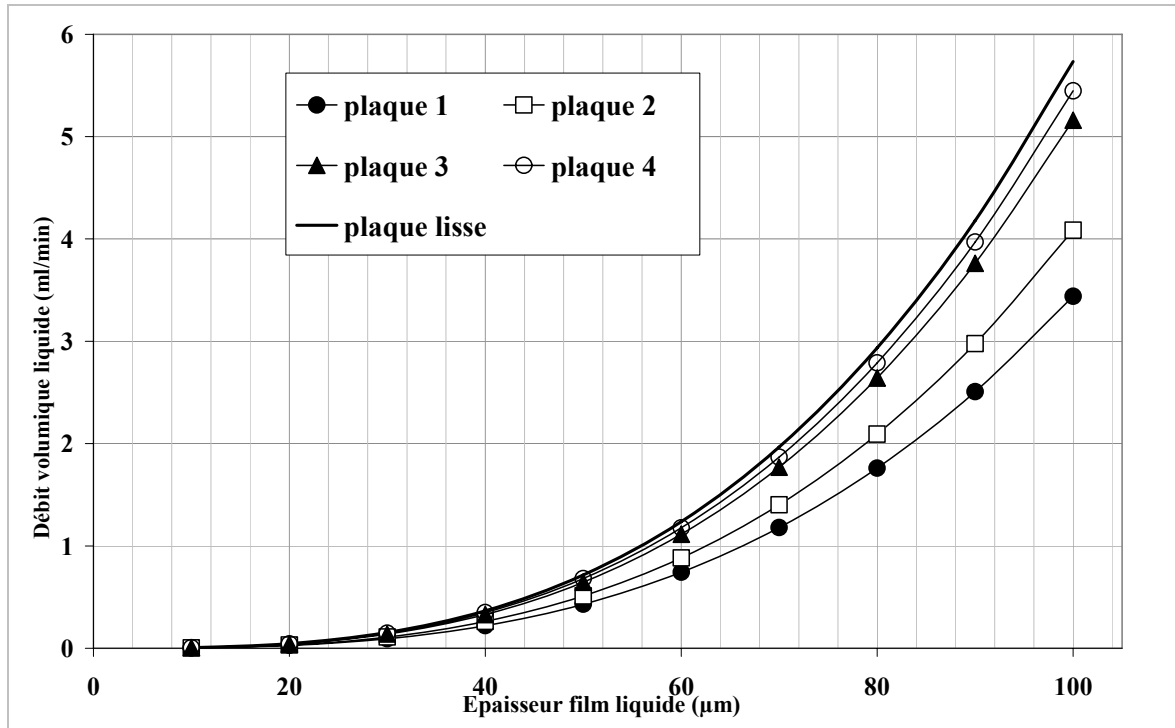


Figure II. 5: Influence de la structuration sur le débit nécessaire pour mouiller la plaque
 Liquide : éthanol ($\mu_L=1,08 \cdot 10^{-3}$ Pa.s et $\rho_L=789$ kg/m³ à 20°C) (cf. Tableau II.2 pour les plaques)

L'utilisation d'un micro-contacteur à film tombant avec des plaques rainurées réduit donc considérablement le débit de liquide nécessaire pour assurer le mouillage total de la surface verticale. Ceci permet de réaliser des études en laboratoire permettant de travailler à des débits modérés contrairement à un micro-contacteur non-structuré.

Grace à une bonne mouillabilité de la surface structurée, on obtient un film stable et particulièrement fin.

1.3.2 Etat de surface des plaques

Dans certains cas, la rugosité des surfaces peut être intéressante pour le dépôt de catalyseurs ou autres couches actives, mais elle peut aussi rendre instable l'écoulement du film tombant liquide.

L'effet de la rugosité sur les processus de transfert de chaleur est très important, car elle a l'effet de pouvoir déplacer la courbe d'ébullition nucléée vers de faibles surchauffes de la paroi.

Cependant, en raison d'un vieillissement des surfaces, la majeure partie du gain sur le coefficient d'échange due à la rugosité disparaît dans le temps [Lallemand, 2005].

Afin d'examiner de plus près l'état de surface des micro-canaux, les quatre plaques micro-rainurées ont été observées au microscope à balayage électronique de type JSM-6490 (Figures II.6 à II.13). Pour chaque plaque, différentes vues ont été prises, d'une part pour montrer un aspect global de la structuration et d'autre part pour avoir un aperçu de l'état de surface.

Plaque 1

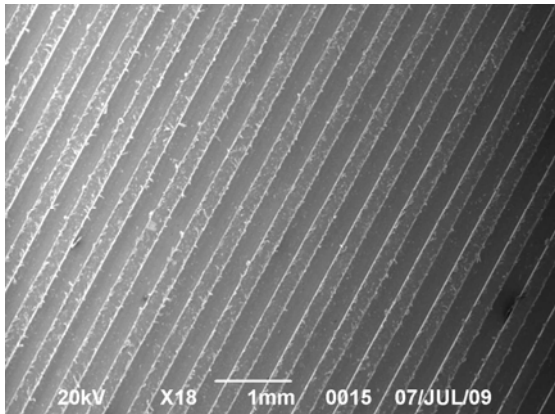


Figure II. 6: Aspect global de la plaque 1 ($w_c=300\mu\text{m}$, $d_c=100\mu\text{m}$), MEB
Plaque 2

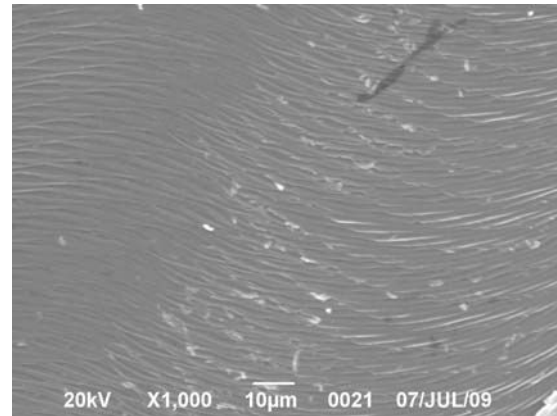


Figure II. 7: Etat de surface de la plaque 1 ($w_c=300\mu\text{m}$, $d_c=100\mu\text{m}$), MEB

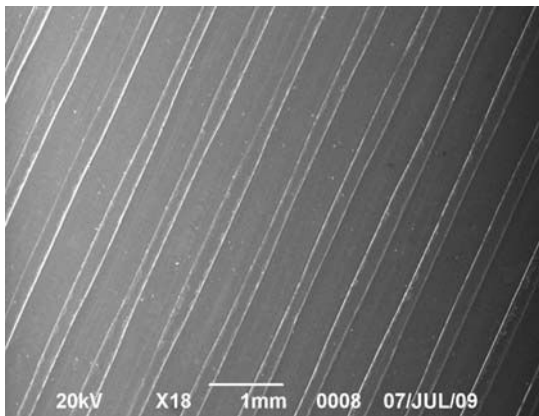


Figure II. 8 : Aspect global de la plaque 2 ($w_c=500\mu\text{m}$, $d_c=150\mu\text{m}$), MEB
Plaque 3

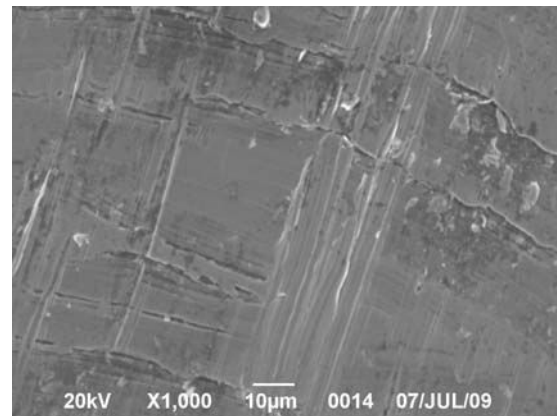


Figure II. 9: Etat de surface de la plaque 2 ($w_c=500\mu\text{m}$, $d_c=150\mu\text{m}$), MEB

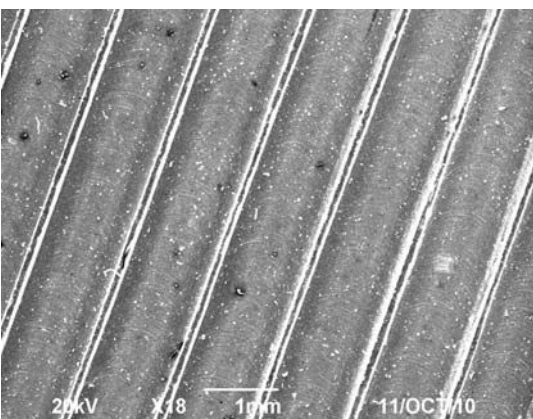


Figure II. 10 : Aspect global de la plaque 3 ($w_c=1000\mu\text{m}$, $d_c=200\mu\text{m}$), MEB

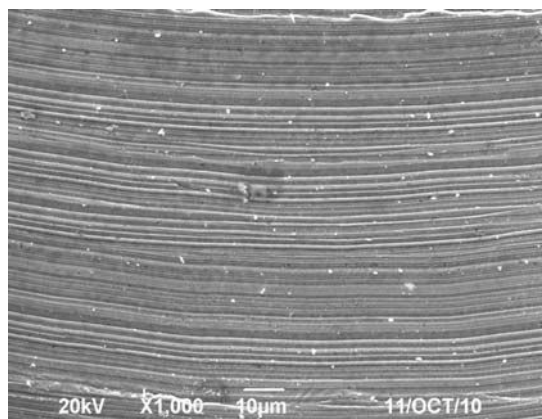


Figure II. 11: Etat de surface de la plaque 3 ($w_c=1000\mu\text{m}$, $d_c=200\mu\text{m}$), MEB

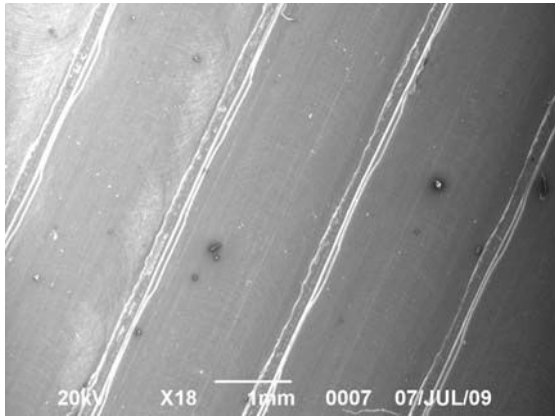
Plaque 4

Figure II. 12: Aspect global de la plaque 4 ($w_c=2000\mu\text{m}$, $d_c=200\mu\text{m}$), MEB

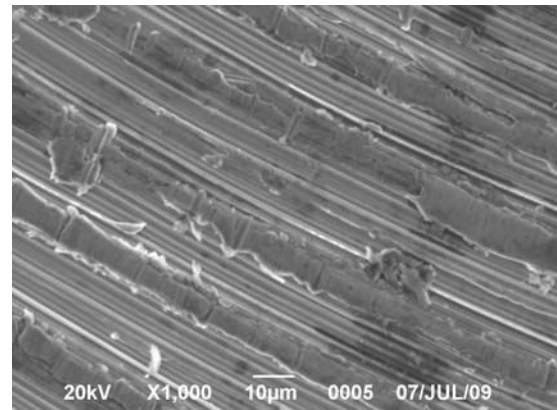


Figure II. 13: Etat de surface de la plaque 4 ($w_c=2000\mu\text{m}$, $d_c=200\mu\text{m}$), MEB

1.4 Description du circuit de chauffe

Les plaques micro-structurées sont chauffées par effet Joule grâce à un circuit résistif apposé au dos de chaque plaque. Ce circuit est alimenté par une intensité variable de 0 à 3A, avec une gamme de tension allant de 0 à 30V. Le chauffage du liquide est assuré par conduction de chaleur à travers l'épaisseur de plaque (conformément à la loi de Fourier).

Sur la face de chauffe de chaque plaque, quatre thermocouples sont également disposés longitudinalement afin de mesurer la température locale en fonction de la position axiale z .

La figure II. 14 illustre la position des quatre thermocouples de type Chromel-Constantan (de diamètre 0,5 mm) disposés contre chaque plaque pour les mesures de température.

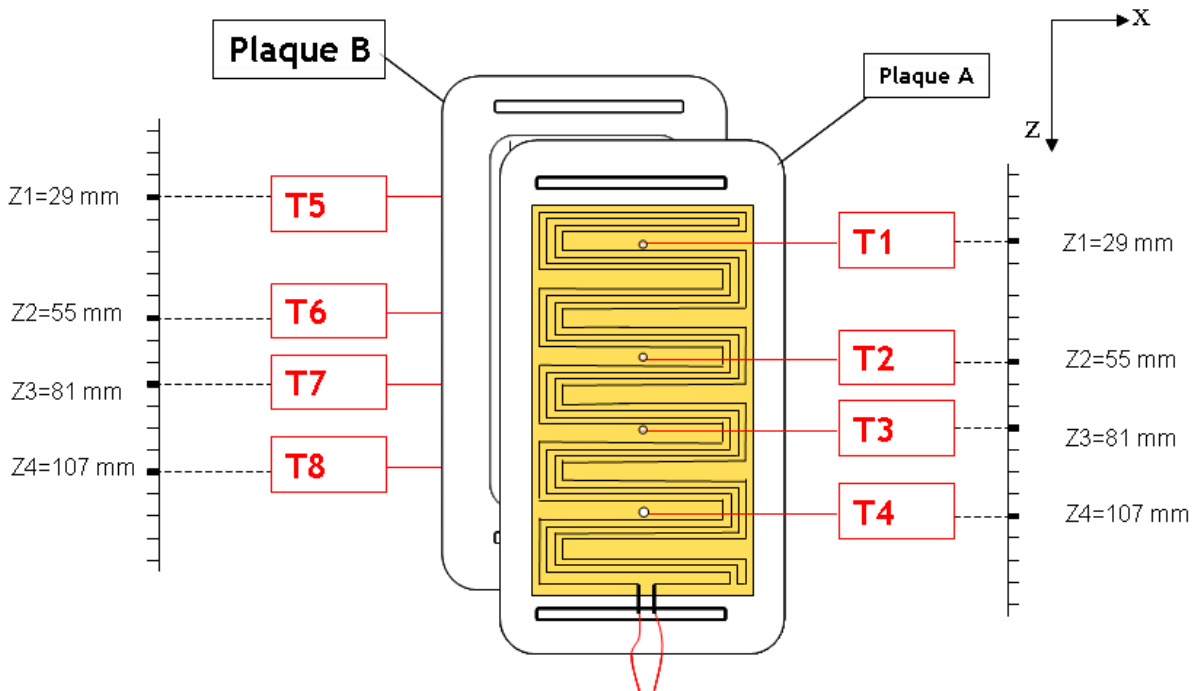


Figure II. 14 : Emplacements des thermocouples sur les plaques micro-structurées

L'élément de chauffe est réalisé par le Service Electronique et Micro-informatique SEMI du LRGP. Il est conçu selon de concept de circuit imprimé, le matériau de support est constitué de FR-4 qui est un composite de résine époxy renforcé de fibre de verre. Le FR-4 est un bon isolant électrique et est utilisé le plus souvent dans la fabrication de circuits imprimés en électronique. Il est doublé d'une fine couche de cuivre sur lequel on dessine le circuit de chauffe par le biais d'une machine permettant de graver les pistes du circuit de chauffe à partir de la plaque vierge de FR-4. Les thermocouples ont une faible épaisseur (0,5mm), leurs dimensions sont bien adaptées à la petite taille du contacteur.

Sur chacune des deux plaques symétriques, l'élément chauffant est placée contre la plaque micro-rainurée. Sur cette dernière on met en place une feuille de silicone dont le but est de réduire les déperditions thermiques d'une part, et d'autre part d'amortir le serrage des plaques. Une plaque de bridage en aluminium vient maintenir le tout (Figure II.15). Des trous de passage correspondants aux emplacements de thermocouples sont percés sur chacun des éléments cités précédemment (élément chauffant, feuille de silicone et plaque de bridage). Un morceau de Téflon[®] percé est inséré dans chaque trou de passage du thermocouple, ceci afin

de maintenir stable ce dernier. Toute la difficulté ici est d'assurer un contact intime entre la surface de la plaque et le thermocouple. Pour ce faire une pâte thermique a été utilisée pour améliorer le contact entre les thermocouples et la plaque micro-rainurée. Enfin, bien placer les thermocouples requiert de la précision, à cet effet des pinces brucelles nous ont permis de les positionner.

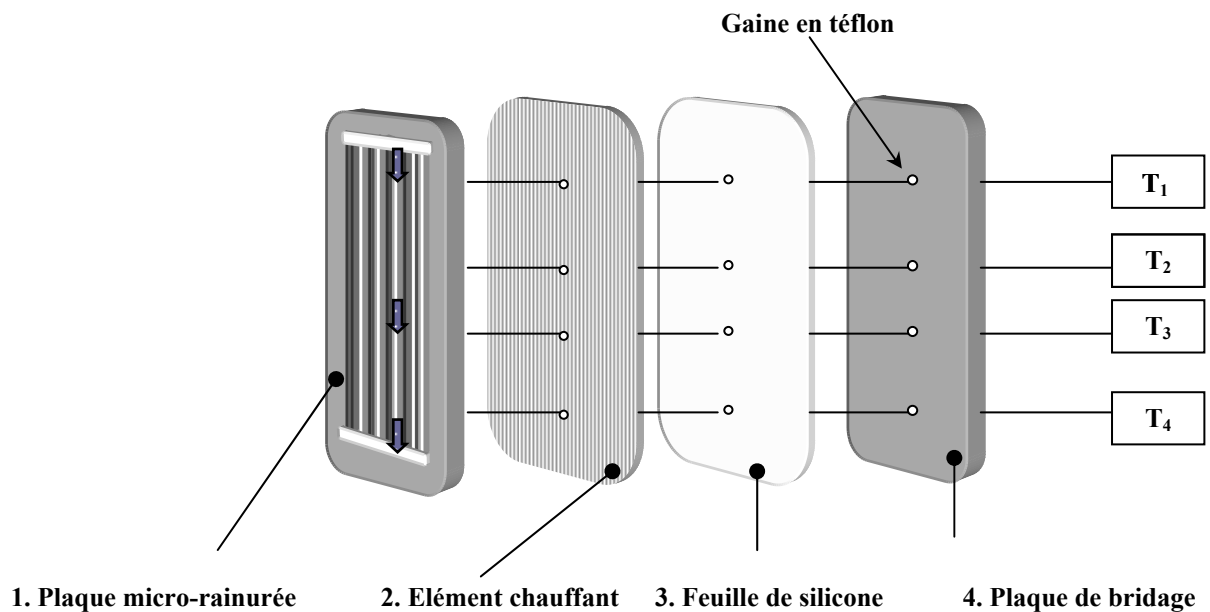


Figure II. 15: Mise en œuvre de l'acheminement des thermocouples dans le système. Vue de face par ordre de superposition : 1. La plaque micro-rainurée, 2. Élément chauffant, 3. feuille de silicone et 4. Plaque de bridage

Toutes les expériences ont été effectuées à flux de chauffes contrôlés. Le chauffage des plaques est assuré par contact direct entre l'élément chauffant alimenté électriquement et la plaque micro-rainurée. La puissance de chauffe électrique totale fournie à chaque plaque est calculée comme étant le produit de l'intensité (I) et de la tension (U) imposée.

2 Montage expérimental et conditions opératoires

2.1 Fonctionnement du micro-contacteur à films tombants

Le liquide est alimenté dans la partie haute du micro-contacteur où il est préchauffé au sein de la chambre distribution avant d'être réparti dans les mini-canaux de la plaque sous forme d'un film tombant.

Il existe plusieurs technologies pour générer des films tombants. Dans notre cas d'étude, la technologie adoptée est celle du débordement. Le film tombant est donc formé une fois que la chambre de distribution est remplie et déborde (Figure II. 16). Des films tombants minces sont générés avec des épaisseurs inférieures à la profondeur des canaux.

Sous l'effet d'un flux imposé et après formation d'un film tombant uniformément repart, le liquide s'écoulant en film tombant est partiellement vaporisé dans le micro-contacteur. La phase liquide non vaporisée est récupérée en sortie du micro-contacteur dans un collecteur jouant le rôle d'une garde hydraulique empêchant ainsi la sortie de la vapeur vers le bas.

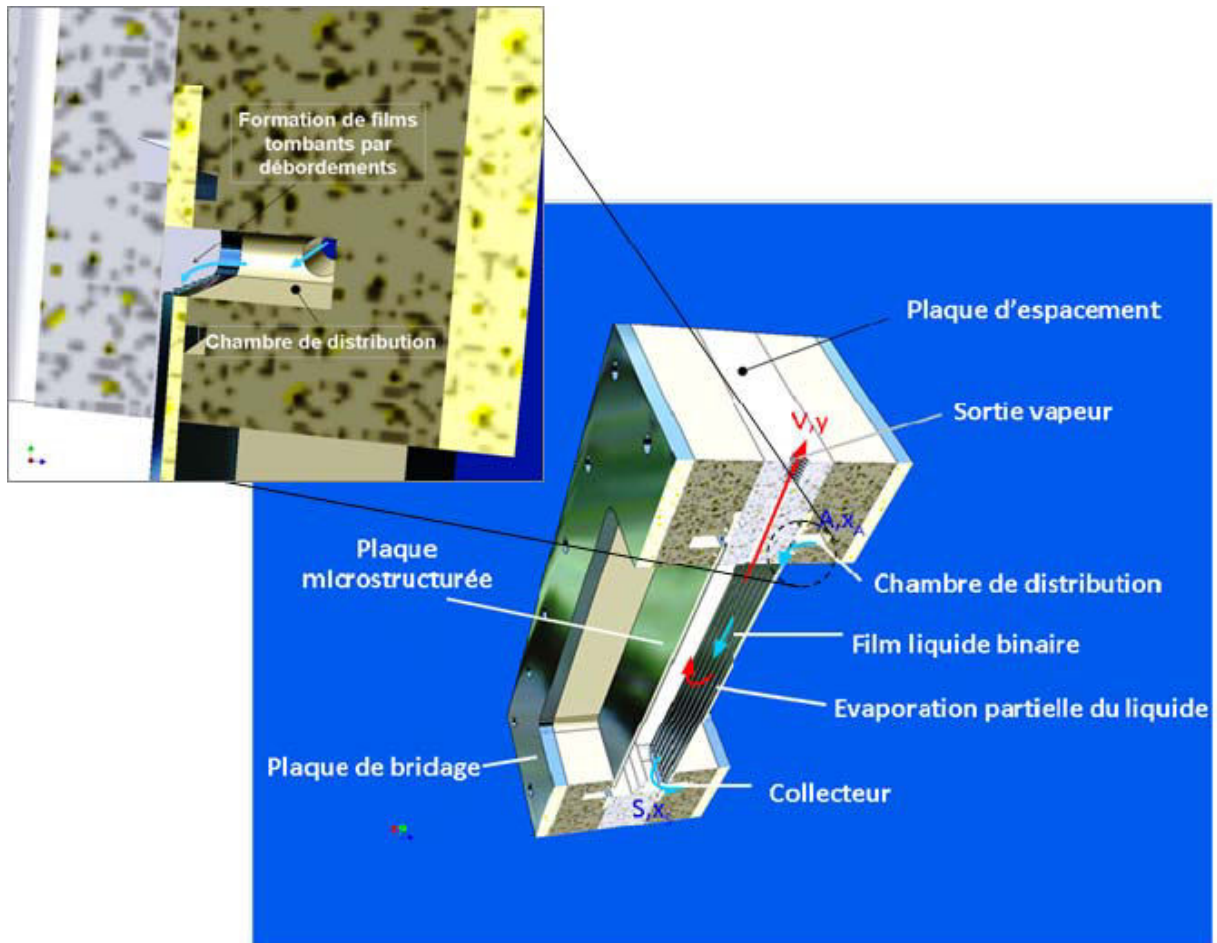


Figure II. 16: Fonctionnement du micro-contacteur à films tombants

La vapeur sortante au sommet du micro-contacteur est recueillie et refroidie dans un condenseur total à eau. Il n'existe aucune entrée supplémentaire de vapeur dans le micro-contacteur, toute la vapeur est formée *in-situ* au sein du micro-contacteur, ceci fait que les mouvements convectifs au sein de la chambre vapeur sont très limités.

A la différence d'autres microsystèmes similaires (Hessel *et al.*, 2000), dans le micro-contacteur à film tombant étudié dans ce travail, du fait de la symétrie du système, la vapeur dans la veine vapeur est en contact permanent des deux côtés avec le film tombant s'écoulant dans les micro-canaux, cet aspect particulier réduit au minimum les effets de re-condensation de la vapeur; bien entendu, cette configuration ne permet pas la visualisation de l'écoulement.

2.2 Description du dispositif expérimental et mise en œuvre

Le montage expérimental est représenté sur la Figure II.17. L'alimentation du système se fait grâce à une pompe volumétrique de type HPLC, couplée à un atténuateur de pulsations, qui permet d'assurer un débit constant. La pompe permet l'alimentation du micro-contacteur avec des débits variant de 1 à 20 mL/min. Cette gamme de débits couvre l'intervalle de débits avec lequel le micro-contacteur peut travailler tout en évitant le débordement des micro-canaux.

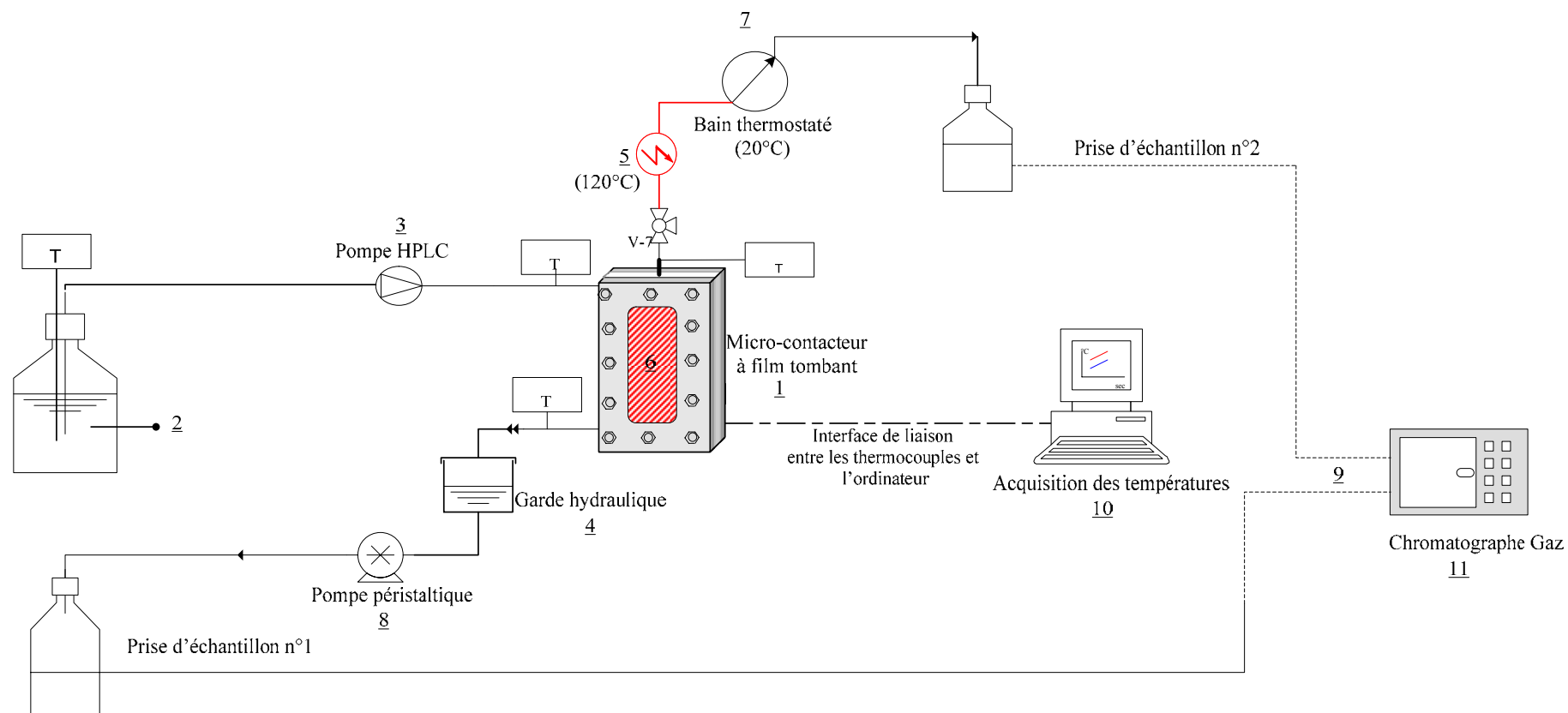
Avant l'entrée du micro-contacteur, le débit total d'alimentation est divisé en deux débits quasi-identiques à l'aide d'un "té" mis en amont du micro-contacteur. Chaque plaque est alimentée avec une incertitude relative de 4% sur le débit.

Une fois dans la chambre de distribution, le liquide s'écoule sur la plaque verticale, sous l'effet de la gravité, en films tombants. En sortie du micro-contacteur, le liquide est récupéré dans un collecteur, ce qui empêche l'accumulation du liquide dans le micro-contacteur.

Avant la formation du film tombant, la phase liquide est préchauffée dans la chambre de distribution. Elle reste sous-bouillante, donc à une température en-dessous de la température de saturation du mélange ou du corps pur. Les thermocouples disposés au sein des chambres de distributions corroborent ces affirmations.

2.2.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental au complet est décrit sur le schéma de la figure II.17, la photographie de l'unité expérimentale est représentée par la figure II.18.



- 1- Micro-contacteur à films tombants (Cf. Figures II.1 et II.2 pour les détails)
- 2- Réservoir d'alimentation;
- 3- pompe HPLC;
- 4- Garde hydraulique
- 5- Resistance de chauffe électrique avec régulateur de température;
- 6- Resistances de chauffe;
- 7- Cryostat avec pompe intégrée (refroidissement); Condenseur
- 8- pompe péristaltique;
- 9- Echantillonnages condensat et soutirât
- 10- Acquisition des températures
- 11- Chromatographie gaz

Figure II. 17 : Montage expérimental



- ①- Micro-contacteur à films tombants
- ②- Réservoir d'alimentation;
- ③- pompe HPLC;
- ④- Garde hydraulique
- ⑤- Résistance de chauffe électrique avec régulateur de température;
- ⑥- Résistances de chauffe;
- ⑦- Cryostat avec pompe intégrée (refroidissement): Condenseur
- ⑧- pompe péristaltique;
- ⑨- Echantillonnages condensat et soutirat

Figure II. 18 : Photographie de l'unité d'évaporation de corps pur (éthanol) et de distillation du mélange binaire éthanol/n-propanol dans un microcontacteur à film tombant

2.2.2 Les éléments auxiliaires

2.2.2.1 Thermocouples

Les capteurs de température choisis sont de type T et K et sont conçus par TC direct[®]. Ils permettent une mesure de la température avec une bonne précision ($\pm 1^\circ\text{C}$).

Hormis le thermocouple placé dans le réservoir d'alimentation ($T_{\text{réservoir}}$), tous les autres thermocouples sont disposés au niveau du micro-contacteur (Figure II.19). Les thermocouples y sont placés de la manière suivante :

- quatre thermocouples sur la face avant (sur la plaque de devant) (T_1 à T_4),
- quatre thermocouples sur la face arrière (sur la plaque de derrière) (T_5 à T_8),
- deux thermocouples à l'entrée liquide du micro-contacteur (T_{alim1} et T_{alim2}),
- deux thermocouples à la sortie liquide du micro-contacteur ($T_{\text{soutirat1}}$ - $T_{\text{soutirat2}}$),
- un thermocouple à la sortie de la vapeur du micro-contacteur (T_{vapeur}).

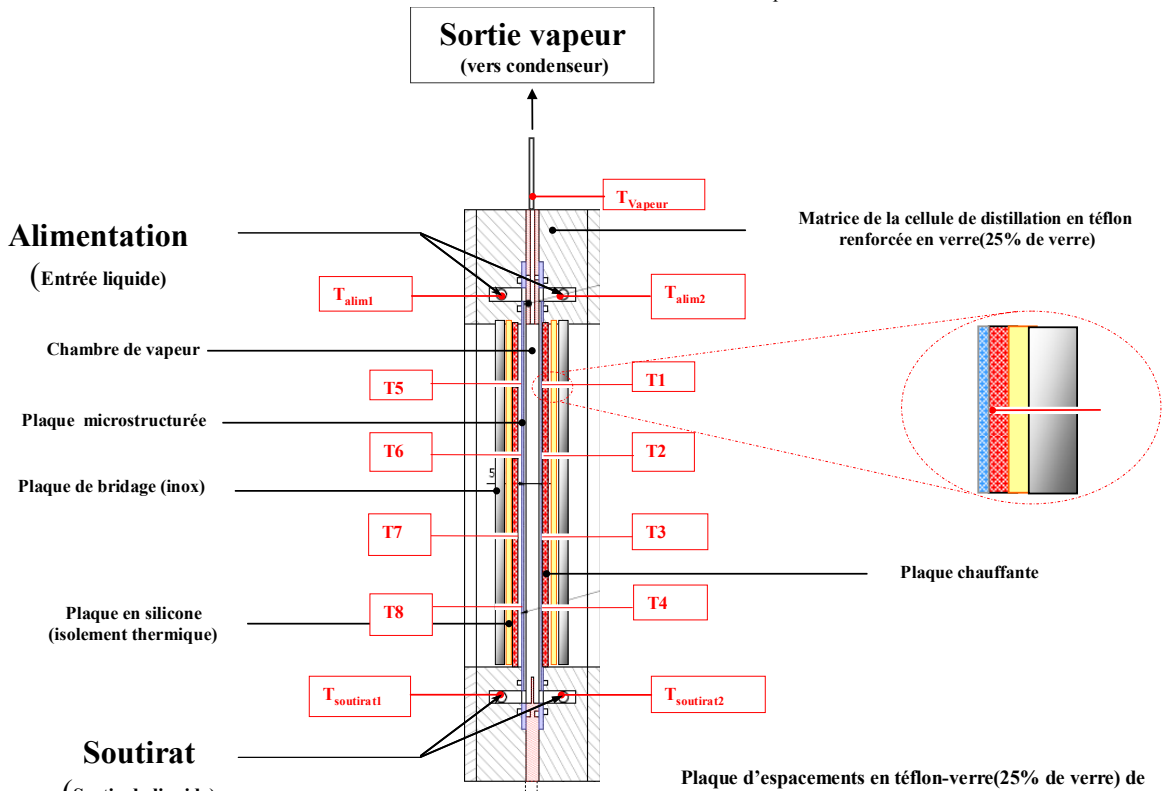


Figure II. 19: Disposition des thermocouples sur le micro-contacteur

Comme détaillé sur le paragraphe 1.4, sur chacune des deux plaques micro-rainurées, quatre thermocouples de types K sont disposés afin de suivre l'évolution de la température des plaques lors de l'évaporation du film liquide.

Ces températures sont très utiles puisqu'elles permettent d'évaluer les coefficients de transfert thermique coté liquide, d'où la nécessité de vérifier avant chaque manipulation que les thermocouples sont bien placés et qu'un bon contact plaque-thermocouple est assuré.

Il est utile de noter que les sondes de températures ont fait l'objet de plusieurs étalonnages.

Les thermocouples sont reliés à deux modules pour PC TC-08 de Farnell[®]. Il s'agit de deux boîtiers possédant chacun huit connecteurs femelles pour thermocouples. Les boîtiers sont reliés au PC par une prise RS232.

L'acquisition des données est réalisée par le logiciel d'acquisition Testpoint[®].

2.2.2.2 Système de régulation de la température de vapeur

Avant la mise en place du système de régulation de la température de vapeur en sortie du micro-contacteur, l'échantillonnage au distillat n'était pas possible. Et ceci bien qu'on observe, par lecture que la température mesurée en tête du micro-contacteur, une valeur correspondant à la température de saturation théorique du film liquide, ceci confirmant que l'évaporation a bien eu lieu au sein du contacteur.

En effet, cette contrainte à l'échantillonnage est due à la condensation totale de la vapeur à sa sortie du micro-contacteur à travers la tubulure pour l'acheminement vers le condenseur.

La tubulure en inox n'étant ni chauffée, ni calorifugée, induit une condensation de la vapeur suivie d'un reflux non voulu de ce dernier vers le micro-contacteur.

Afin de palier au problème de condensation de la vapeur à la sortie du micro-contacteur, un système de chauffe a été réalisé pour maintenir la vapeur à une température supérieure à celle de la saturation du liquide. Pour ce faire, un filament chauffant est enroulé sur la tubulure où passe la vapeur produite. Le système de chauffage adopté (Figure II.20) comporte une régulation en PID qui permet de maintenir la température de chauffage au dessus de 120°C. Cette température est choisie de telle sorte qu'elle soit supérieure aux points d'ébullition du mélange.

La température du filament chauffant est mesurée par un thermocouple de contact. Cette information est ensuite relayée à un régulateur PID contrôlant la tension imposée aux bornes du fil, ainsi le régulateur contrôle la puissance de chauffe nécessaire pour satisfaire à la consigne de température souhaitée.

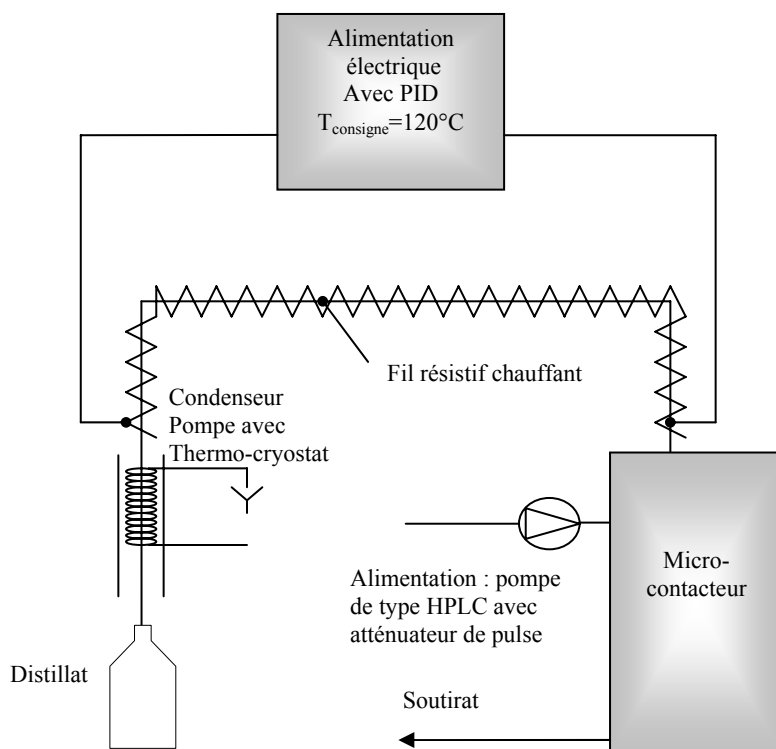


Figure II. 20: représentation schématique de la régulation de la température de la vapeur en sortie

2.2.2.3 Le condenseur

La vapeur provenant de la vaporisation partielle de l'alimentation est acheminée vers le condenseur ou elle est collectée, puis condensée. Un mélange d'eau glycolée circule en continu dans le condenseur grâce à un thermocryostat Haake Phoenix II P2. La température du cryostat est fixée à 20°C.

Le montage est calorifugé au niveau du micro-contacteur, des sondes de température afin de limiter les déperditions thermiques.

2.3 Produits et système binaire éthanol /n-propanol

2.3.1 Choix et propriétés des produits étudiés

Bien que le transfert thermique au sein micro-contacteur à films tombants est liée à la conception et à la configuration du système elle-même (configuration, micro-structuration des supports, régime d'écoulement...), il n'en demeure pas moins que les propriétés thermo physiques des produits chimiques utilisés jouent un rôle dans les processus de transfert de chaleur et de matière. Ainsi, trois principales propriétés des fluides utilisés peuvent affecter les performances du micro-contacteur. Ces propriétés sont la viscosité (μ_L), la chaleur spécifique (C_{pL}) et la conductivité thermique (λ_L).

Afin de mieux comprendre l'effet des propriétés du fluide sur les transferts de chaleur et de matière dans le micro-contacteur à film tombant, deux produits ont été testées: l'Éthanol et le n-propanol. Ces deux produits ont également été utilisés en tant que système binaire afin d'étudier la faisabilité expérimentale de la distillation d'un mélange binaire au sein micro-contacteur.

L'objectif a été de travailler avec des produits qui transfèrent bien l'énergie (bonnes chaleurs latentes de vaporisation et conductivités thermiques) et qui, mis ensemble ont une volatilité relative suffisamment élevée ($\alpha=2,13$) pour favoriser l'étude de la distillation.

Tous les produits chimiques utilisés sont de qualité analytique. L'éthanol et le n-propanol sont fournis par la société Roth®.

Les propriétés physico chimiques de l'éthanol, et du n-propanol sous pression atmosphérique sont consignées dans le tableau II.3.

Fluide	Ethanol	n-propanol
Masse molaire, M [g/mol] à 20°C	46,068	60,097
Tension de surface σ_L [mN/m] à 20°C	22,29	23,78
Masse volumique liquide, ρ_L [kg/m ³] à 20°C	789	805
Capacité calorifique spécifique liquide, Cp_L [J/mol.K] à 20°C	112,40	144,466
Conductivité thermique liquide, λ_L [W/m.K] à 20°C	0,168	0,157
Viscosité liquide, μ_L [10 ⁻³ Pa.s] à 20°C	1,08.	1,95
Température d'ébullition [°C]	78,4	97,1
Chaleur latente de vaporisation [kJ/mol] à T=Téb	38,67	47,53

Tableau II. 3: Propriétés de l'éthanol et du propanol à 20°C, et à P=101.3kPa données du DDB (Dortmund Data Bank®)

2.3.2 Propriétés physiques et thermodynamiques du mélange

Le tableau II.4, donne quelques propriétés physiques du couple éthanol/n-propanol.

Dans notre étude, pour les données d'équilibre, nous avons choisi de nous référer aux valeurs fournies par la base de données SIMSCI de Pro/II Inc.

Les données d'équilibre ont permis le tracé du diagramme température-composition : T-x,y représenté sur la figure II.21. Il est également utile de posséder sous forme polynomiale les propriétés thermodynamiques (corrélations de la courbe de rosée et de bulle) pour d'éventuelles utilisations en simulation numérique par exemple. Ainsi, les interpolations des courbes de rosée et de bulle tracées sur la figure II.21 peuvent se mettre sous formes d'équations (Equations II-5 et II-6).

$$T_{\text{rosée}} = 0,3453x^6 - 1,5534x^5 + 3,5992x^4 - 7,0472x^3 + 13,54x^2 - 27,563x + 97,062 \text{ Equation II- 5}$$

$$T_{\text{bulle}} = -0,0756y^6 - 0,076y^5 - 0,5522y^4 - 0,9671y^3 - 3,142y^2 - 13,866y + 97,062 \text{ Equation II- 6}$$

Fluide	Mélange équimolaire éthanol/n-propanol à 760mmHg
Température d'ébullition mélange [°C]	85,9
Enthalpie liquide [10^6 J/s]	0,0015
Entropie liquide [J/kg/K]	5357
Cp liquide [J/kg/K]	3267
Masse molaire du mélange [g/mol]	53
Viscosité du liquide [cp]	0,4696
Conductivité thermique liquide [W/m.K]	0,147
Tension de surface [N/m]	0,0176

Tableau II. 4: Propriétés d'un mélange équimolaire éthanol/n-propanol en ébullition à 760 mm Hg (Base de données SIMSCI de PRO/II)

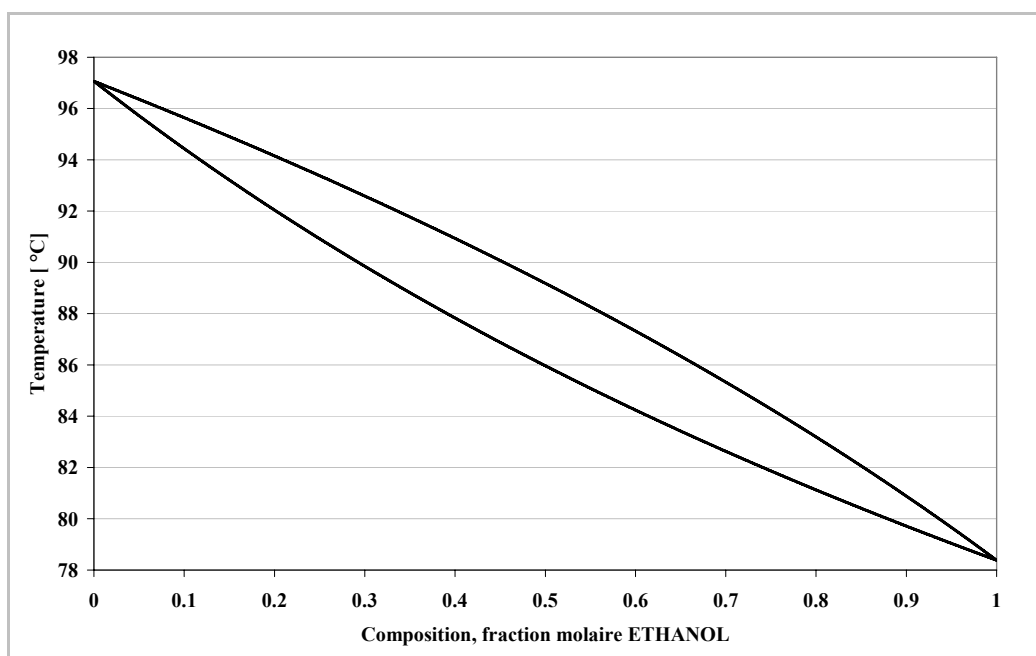


Figure II. 21: Diagramme T-xy pour le mélange binaire éthanol/n-propanol à P=101,3kPa (Données de la base SIMSCI Pro/II)-mélange idéal

2.3.3 Chromatographie en phase gazeuse

Dans l'étude de faisabilité de la distillation dans le micro-contacteur à films tombants, la qualité d'analyse des échantillons (soutirat et distillat) provenant de la séparation du mélange binaire dépend fortement du choix de la colonne chromatographique ainsi que des conditions opératoires (température, débit de gaz vecteur et pression de travail).

Les analyses ont été réalisées sur un chromatographe Varian® 3900 muni d'un injecteur split/splitless, d'un détecteur à ionisation de flamme (FID) et d'un passeur automatique d'échantillons. La colonne capillaire utilisée est du type DB-624 (-20 < température limite < +260 °C), de 30 m de long et avec un diamètre interne de 0,53 mm. La phase stationnaire est un film de 3 µm d'épaisseur formé de 6% de cyanopropylephényle et de 94% de diméthyle polysiloxane.

Les conditions utilisées sont les suivantes :

- Gaz vecteur : 5 mL.min⁻¹
- Make-up (He) : 25 mL.min⁻¹
- Air : 300 mL.min⁻¹
- Hydrogène : 30 mL.min⁻¹
- Température injecteur : 150°C
- Température détecteur : 250°C
- Programmation de la colonne : température initiale de 60°C pendant une minute, puis montée en température de 5°C/min jusqu'à 120°C. Ceci permet de fixer un temps d'analyse relativement court de 14 minutes.

Un volume de 1µL d'échantillon liquide, constitué d'éthanol et de n-propanol, est injecté automatiquement par le biais du passeur d'échantillon, à travers un septum. La seringue d'injection est équipée par une pointe adaptée afin d'éviter d'endommager les septums. Le mode d'injection choisi est le *split*, adéquat aux analyses des faibles quantités d'échantillons concentrés sans avoir recours à une dilution préalable. Ce mode permet de fractionner en deux parties le débit total du gaz vecteur mélangé à l'échantillon. Le paramètre opératoire fixé est le split ratio défini par le rapport du débit du split et du débit du gaz vecteur circulant dans la colonne. Ainsi une grande partie du liquide injecté par split est éliminée de l'injecteur par une vanne de fuite. Seule une petite fraction du mélange est entraînée par le gaz vecteur vers la colonne (Hélium pur à 99,995% de qualité analytique).

Dans la colonne, le mélange liquide à analyser est retenu par la phase stationnaire. Il est caractérisé par le temps de rétention (t_R) qui englobe le temps de passage dans la colonne et le temps durant lequel le soluté est retenu.

Pour les conditions d'analyses choisis, le temps de rétention de l'éthanol est de 2mn 45s et celui du n-propanol de 3mn 55s.

3 Mode opératoire

Toutes les expériences se sont déroulées selon le même mode opératoire, les paramètres modifiables par l'expérimentateur sont : le débit d'alimentation, la puissance de chauffe électrique, la plaque micro-rainurée et l'espacement de la veine vapeur. Par manque de temps, ce dernier paramètre n'a pas été étudié dans ce travail.

Certaines précautions sont nécessaires pour pouvoir réaliser les manipulations de manière fiable et reproductible :

- Un mouillage correct de la plaque doit être assuré afin que le film liquide obtenu soit stable. En effet la plaque peut être sèche à certains endroits et le liquide peut déborder à certaines parties de la plaque micro-rainurée.
- Un autre point important est de s'assurer que le liquide ne s'accumule pas dans le micro-contacteur, d'où l'existence d'une garde hydraulique à l'extérieur du dispositif (Figure. II.22). Ce dernier permet la récupération directe du film liquide évacué aux fentes inférieures des plaques. La récupération est faite sans l'aide d'une pompe, le film liquide s'écoule par gravité entre le micro-contacteur et la garde hydraulique.

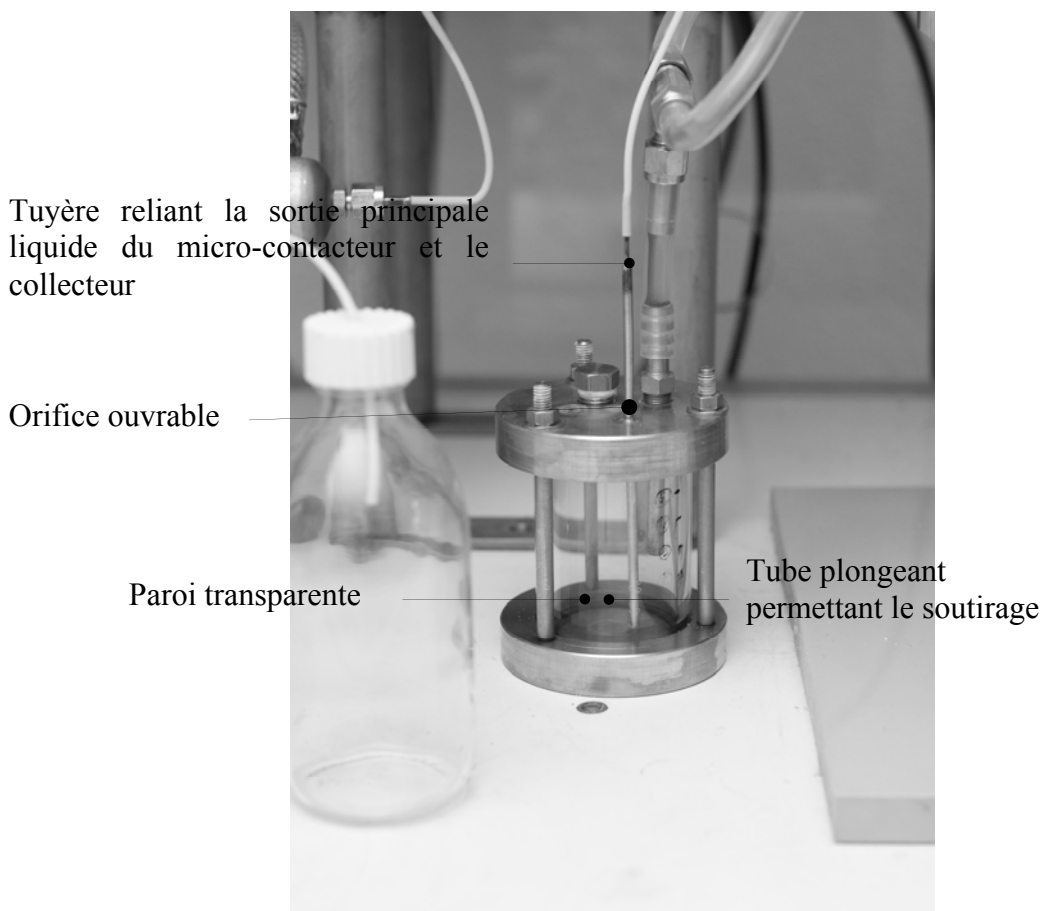


Figure II. 22: photographie du collecteur en sortie du micro-contacteur

Le collecteur (Figure II.22) permet d'évacuer le liquide non évaporé par gravité via les chambres d'évacuation du micro-contacteur. L'aspect transparent des parois permet par visualisation, d'éviter l'accumulation du liquide dans le système.

3.1 Démarche expérimentale

Avant de commencer toute manipulation, l'installation est mise en route. Cela consiste à mettre en fonctionnement la pompe HPLC, le refroidissement du condenseur et un mouillage des plaques.

La démarche suivante est adoptée pour toutes les manipulations.

1. Le mélange d'alimentation est préparé selon la fraction molaire souhaité. Pour cela, les quantités nécessaires sont pesées à la balance de précision. Un échantillon de l'alimentation est analysé par chromatographie gazeuse pour vérifier son titre conformément à l'étalonnage préalable de la colonne capillaire. Dans le cas de l'étude du corps pur, cette étape n'est pas nécessaire.
2. Une circulation d'un faible débit de liquide est mise place sur les plaques pour s'assurer qu'elles sont entièrement mouillées. Cette opération sert à initialiser l'écoulement et à obtenir un film liquide stable afin d'éviter la formation de zones sèches par endroits.
3. La tension et/ou le courant (le produit des deux donnant la puissance de chauffe électrique souhaitée : $P=U.I$) sont fixées en fonction la puissance désirée
4. Une fois que tout le système est prêt, le débit de l'alimentation est imposé.
5. Les réceptacles préalablement préparés à cet effet (nettoyés et pesés) sont mis en place. La stabilisation des températures est alors attendue, à ce moment, un délai correspondant au temps de mise en régime du système d'environ d'une heure est respecté. Après stabilisation des températures, le logiciel d'acquisition des températures est mis en route et un fichier d'acquisition est créé. On observe une sortie régulière du condensat et du soutirat.
6. Les débits de distillat et de soutirat sont déterminés par empotage. Les analyses de titre molaires sont effectuées dans le cas de l'étude du mélange binaire éthanol/n-propanol.
7. Concernant le montage du micro-contacteur, une attention particulière a été portée au montage des vis de fixation et des joints d'étanchéité. Notamment à propos des plaques de bridage servant à maintenir les plaques de chauffage. En effet un serrage trop fort ou insuffisant risquerait de déplacer les plaques micro-structurées, ce qui peut provoquer des fuites et/ou des déformations des éléments de maintien.

3.2 Temps de réponse du système

Afin de déterminer avec une bonne précision : fractions molaires, débits, températures et coefficients d'échange en régime permanent du micro-contacteur, il est nécessaire de connaître le temps de réponse du système. Nous avons procédé aux mesures requises pour déterminer expérimentalement cette valeur. Le système est soumis à une puissance de chauffe constante pendant environ 12h de façon à atteindre son état d'équilibre thermique, les températures du

système étant mesurée de façon à être sûr d'avoir atteint cet état stationnaire sans circulation de liquide. Une fois cet équilibre thermique atteint, on fait circuler un débit de liquide connu (Figure II.23), les températures sont enregistrées au cours du temps via l'interface d'acquisition (Testpoint[®]).

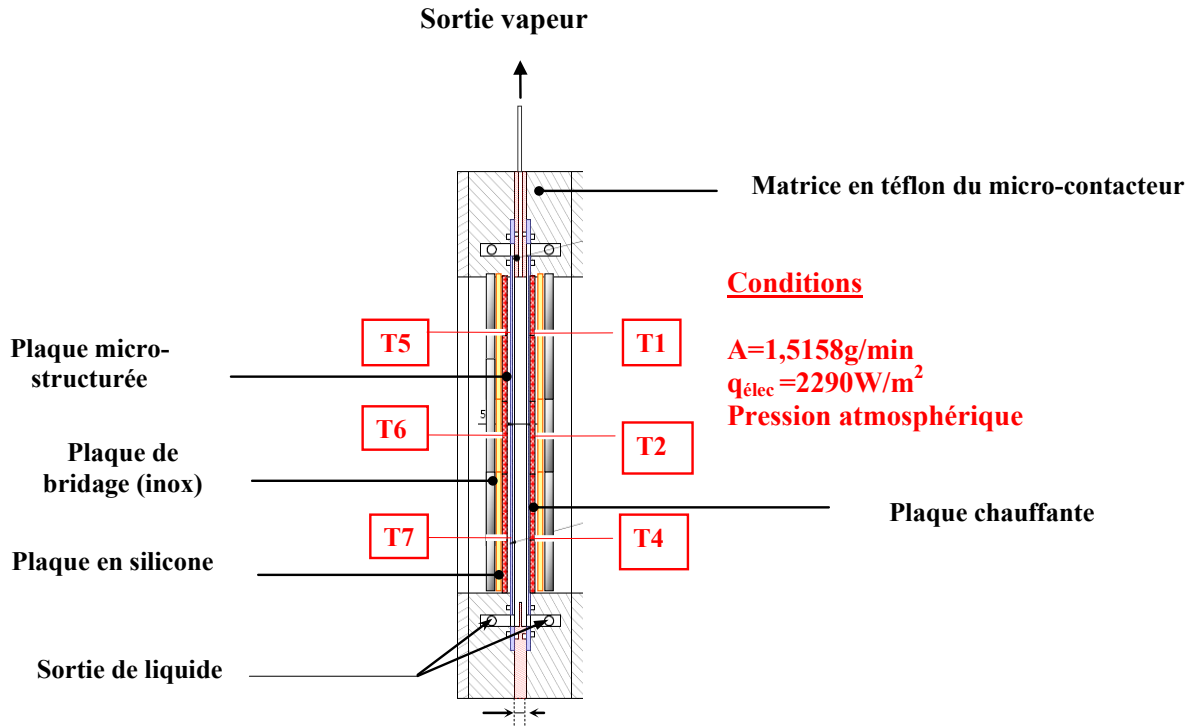


Figure II. 23: Choix des points de mesures sur le micro-contacteur pour la mesure du temps de réponse

L'évolution temporelle de la température est exponentielle et est sous la forme :

$$T(t) = A.(e^{\frac{-t}{\tau}} - 1) + B \quad \text{Equation II- 7}$$

t désigne la variable temporelle et A et B sont des constantes, τ représente la constante de temps. L'équilibre théorique est atteint au bout d'un temps infini.

Le temps de mise en régime d'un système est le plus souvent pris comme égal à 5 fois la constante de temps du système (Figure II.24).

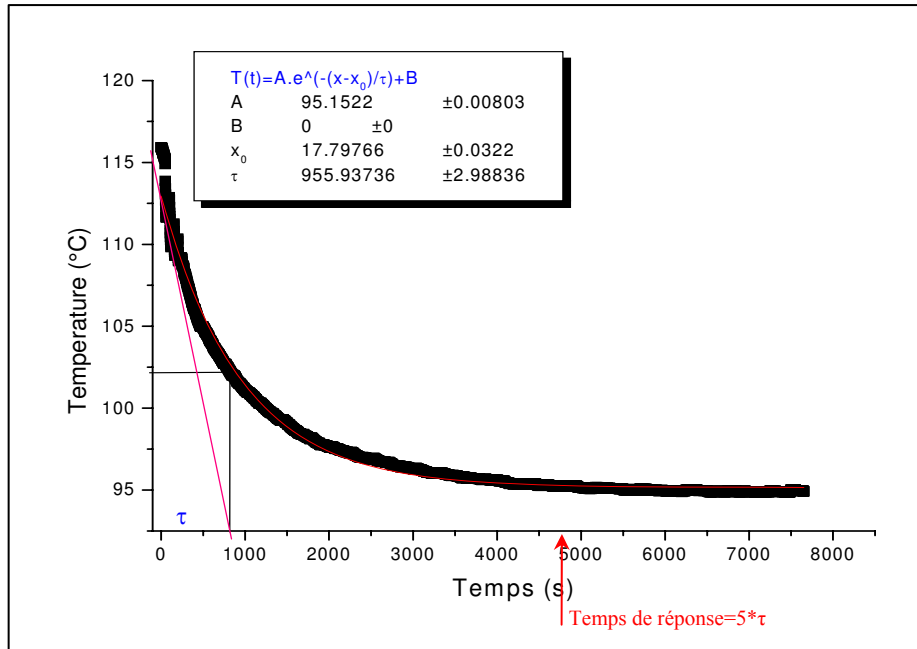


Figure II. 24 : Méthode graphique de détermination du temps de réponse

Pour avoir une meilleure représentativité du système, six points de mesures repartis sur l'ensemble du micro-contacteur ont été choisis (Figure II.25 (a-f)). Ce choix permet une meilleure estimation du temps de réponse. La moyenne des temps de réponse sur les six points sera retenue comme représentative de la dynamique du système. C'est le temps au-delà duquel on considère que le système a atteint le régime permanent.

Nous avons alors pu déterminer la constante de temps moyenne du système à 849s soit 14mn. Une constante de temps est une grandeur, homogène à un temps, caractérisant la rapidité de l'évolution d'une grandeur physique dans le temps.

La constante de temps est souvent liée à la réponse du système étudié à une perturbation instantanée (cette perturbation peut correspondre dans notre cas à un changement de la puissance de chauffe ou du débit d'alimentation), elle caractérise alors l'ordre de grandeur du temps au bout duquel le nouvel équilibre est atteint, on l'utilisera pour déterminer le temps nécessaire au système pour répondre à une modification de la consigne (laquelle peut être une puissance de chauffe ou un débit).

Dans notre cas, le temps de réponse est égal à environ 1h10mn, à ce temps, 99% de la température d'équilibre est atteint. Les prises d'échantillonnage du distillat, du soutirat ainsi que l'acquisition des températures devraient donc commencer au bout de ce temps.

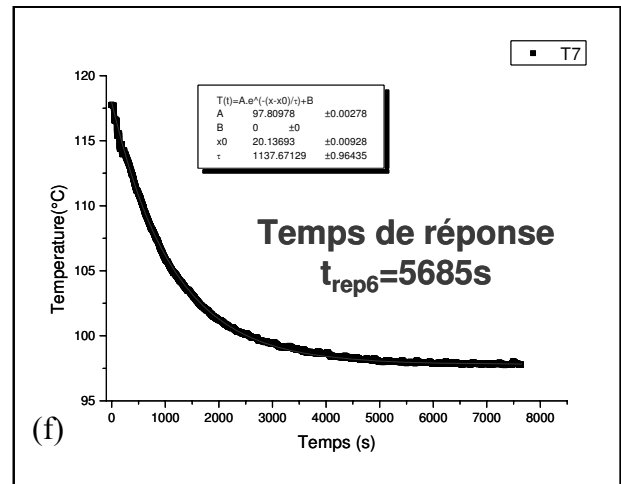
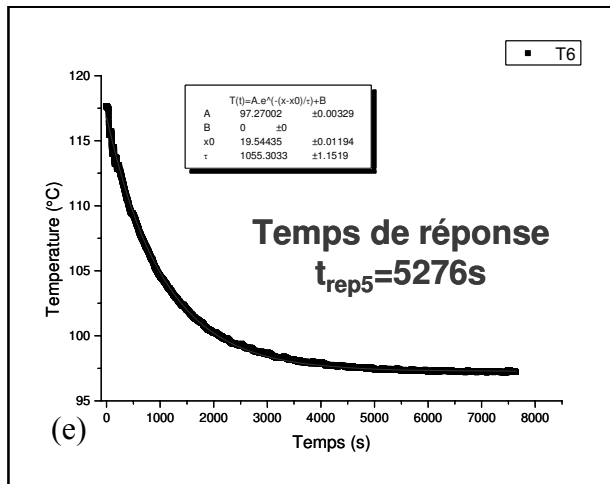
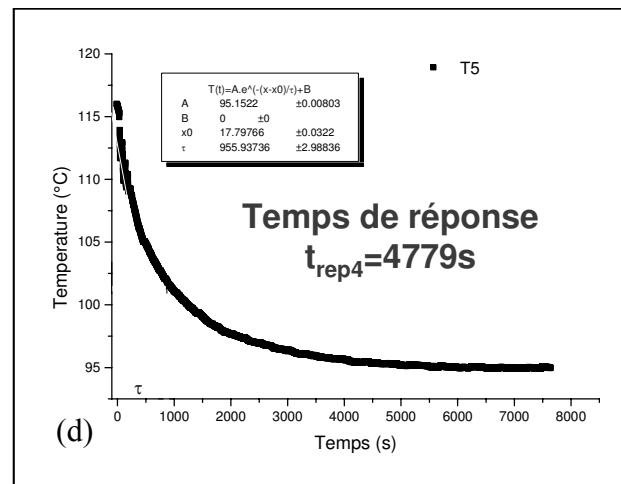
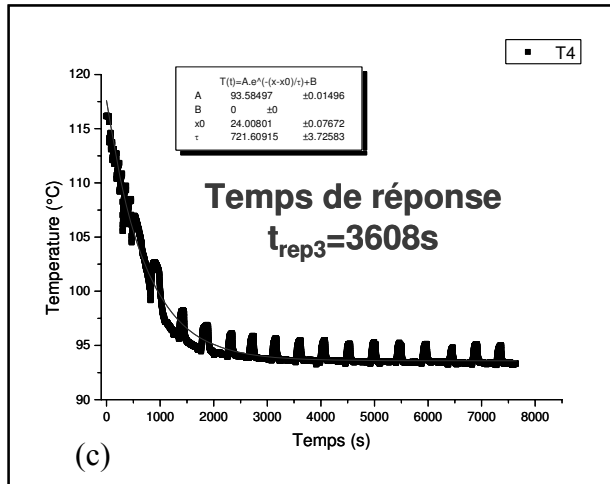
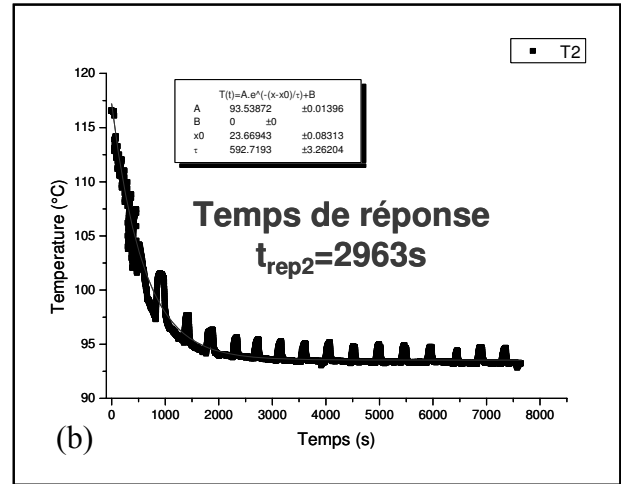
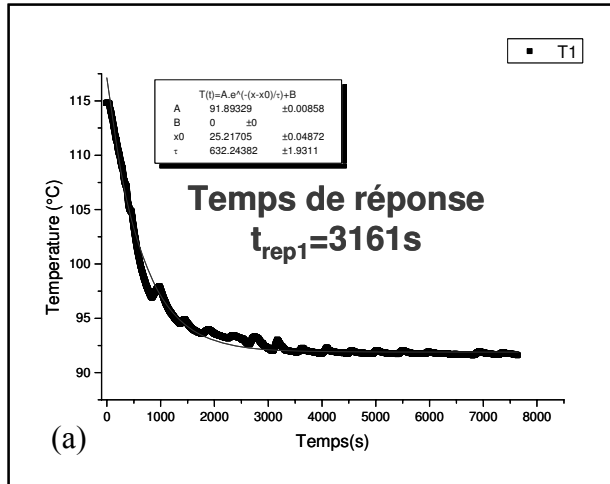


Figure II. 25(a-f): Evolution de la température en fonction du temps pour les six points de mesures choisis ($A=1,52g/min$, $q_{elec}=2290W/m^2$, $P=101,3kPa$)

3.3 Conditions opératoires

Le Tableau II.5 résume les conditions opératoires de différentes expériences effectuées dans le cadre de l'évaporation d'un corps pur (éthanol) et du mélange binaire éthanol/n-propanol. Il donne les gammes de valeurs des conditions opératoires ainsi que des remarques sur certaines de ces valeurs.

Grandeur	Unités	Symbole	Minimum	Maximum	Remarques
Nombre de Reynolds du liquide	-	Re_L	1	8	Ecoulement laminaire lisse
Débit d'alimentation	g/min	A_m	1	6	-
Epaisseur du film liquide	μm	δ_L	60	145	Pas de débordements des micro-canaux
Nombre de Kapitza liquide	-	Ka_L	1,31E-08	1,53E-09	-
Nombre de Weber liquide	-	We_L	0,004	0,22	-
Flux de chauffe électrique	W/m^2	q_{elec}	2000	5000	-
Température de saturation	°C	$\theta_{sat.}$	78	87	Etude corps pur et mélange binaire
Fraction molaire d'alimentation	-	x_A	0,46	1	Etude corps pur et mélange binaire

Tableau II. 5: Conditions opératoires des expériences effectuées- P=101.3kPa

3.4 Incertitudes de mesures et reproductibilité des expériences

Les incertitudes de mesures expérimentales peuvent avoir plusieurs sources : détermination des débits par empotage (pesage des masses), incertitudes provenant de l'appareil CPG bien qu'un passeur d'échantillons soit installé afin de réduire les incertitudes dues à l'injection.

Notons aussi que la reproductibilité des expériences dépend fortement de la nature des contacts (élément chauffant-plaque micro-rainurée) et du bon contact des thermocouples placés contre la face extérieure des plaques. Il convient donc avant chaque manipulation de s'assurer du bon

fonctionnement et du positionnement des thermocouples, ceci est nécessaire pour avoir des mesures fiables.

Dans un souci de reproductibilité des expériences, chaque manipulation a été répétée deux fois, et en cas de problème de reproductivité d'autres essais supplémentaires étaient nécessaires pour valider nos résultats. La moyenne des valeurs obtenues a été ensuite effectuée. Les calculs d'incertitudes sur les débits, compositions et températures sont détaillés dans l'annexe C.

Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté le micro-contacteur à films tombants, principal support de l'étude.

Outre sa fabrication bon marché, le micro-contacteur à films tombants présente l'avantage d'être modulable et flexible. Les étapes de montage et démontage de l'appareil étant aisées, on peut étudier les influences des paramètres géométriques (micro-structuration). On a aussi la possibilité de faire varier le volume occupé par la phase vapeur en modulant l'épaisseur de la veine vapeur.

Une évaluation des aires de transferts des plaques a permis de mettre en évidence le potentiel de la structuration à améliorer les processus de transferts de chaleur et de masse avec des aires spécifiques de transfert de chaleur et de matière pouvant être paramétrées en modulant les caractéristiques géométriques de l'appareil.

Enfin, outre la présentation du principe de fonctionnement du micro-contacteur à film tombant et des conditions opératoires des études expérimentales effectuées, le micro-contacteur à films tombants démontre qu'à travers la micro-structuration des supports d'écoulement, on peut travailler à des débits modérés et stabiliser l'écoulement du liquide en favorisant l'utilisation de la quasi-totalité de l'aire spécifique offerte.

**Chapitre III : Caractérisation du système
expérimental et étude du transfert thermique
dans le micro-contacteur à film tombant**

Introduction

Nous allons présenter dans ce chapitre nos résultats expérimentaux dans le cas de l'évaporation de l'éthanol pur au sein du micro-contacteur à film tombant.

Cette étude permettra de mieux comprendre le fonctionnement du micro-contacteur lors de l'évaporation de film tombant et de mettre en lumière les mécanismes de transferts thermiques dans un tel dispositif dont la particularité est de réunir en son sein deux concepts que sont : la technologie des micro-canaux et celui des films tombants.

Nous présenterons d'abord le protocole expérimental adopté ainsi que les conditions opératoires.

A travers nos mesures expérimentales, nous étudierons l'évolution du coefficient d'échange de chaleur avec le flux de chauffe et le débit d'alimentation, ces mesures seront ensuite analysées.

Enfin, ces résultats seront également comparés aux données de la littérature puis discutés. Cette démarche permettra d'identifier les phénomènes rencontrés pour une meilleure prise en main du dispositif, étape décisive dans le cadre de l'étude de faisabilité de la distillation dans un tel système.

1 Conditions expérimentales

Le transfert de chaleur dans le micro-contacteur à film tombant a été étudié expérimentalement dans les conditions opératoires consignées dans le tableau III.1.

Toutes les expériences ont été effectuées à pression atmosphérique avec différents flux de chauffe électrique ($2000\text{W/m}^2 < q_{\text{élec}} < 4500\text{W/m}^2$), le nombre de Reynolds du film tombant est compris entre 1 et 5.

Les propriétés thermo-physiques de l'éthanol sont obtenues à partir de la base de données Dortmund Data Bank[®].

Grandeur	Unités	Symbole	Valeurs
Nombre de Reynolds liquide	-	Re_L	1-5
Débit d'alimentation (pour les deux plaques)	g/min	A	1-5
Epaisseur du film liquide	μm	δ_L	60-145
Nombre de Kapitza liquide	-	Ka_L	1,31E-08 – 1,53E-09
Nombre de Weber liquide	-	We_L	0,004-0,22
Flux de chauffe électrique	W/m^2	$q_{\text{élec}}$	2000-5000
Température de saturation	°C	$\theta_{\text{sat.}}$	78
Fraction molaire d'alimentation	-	x_A	1

Tableau III. 1: Conditions opératoires

2 Protocole expérimental et méthodes

Après la mise en route, une période de stabilisation est observée entre chaque acquisition. Pour ce faire, à chaque fois que le débit ou le flux de chaleur est changé, un temps d'attente de 1h10 min est fixé.

L'acquisition des températures est assurée par l'interface Testpoint[®] durant toute la durée des essais, ce qui permet de vérifier la stabilisation des valeurs.

Sauf précisions, les valeurs des températures données dans les graphes qui suivent correspondent aux valeurs en un point, plus précisément celles relevées par le thermocouple T₆. (Figure III.1). La raison du choix de ce point de mesure est due à la symétrie du système (chaque plaque est sensiblement alimentée par le même débit et le même flux électrique)

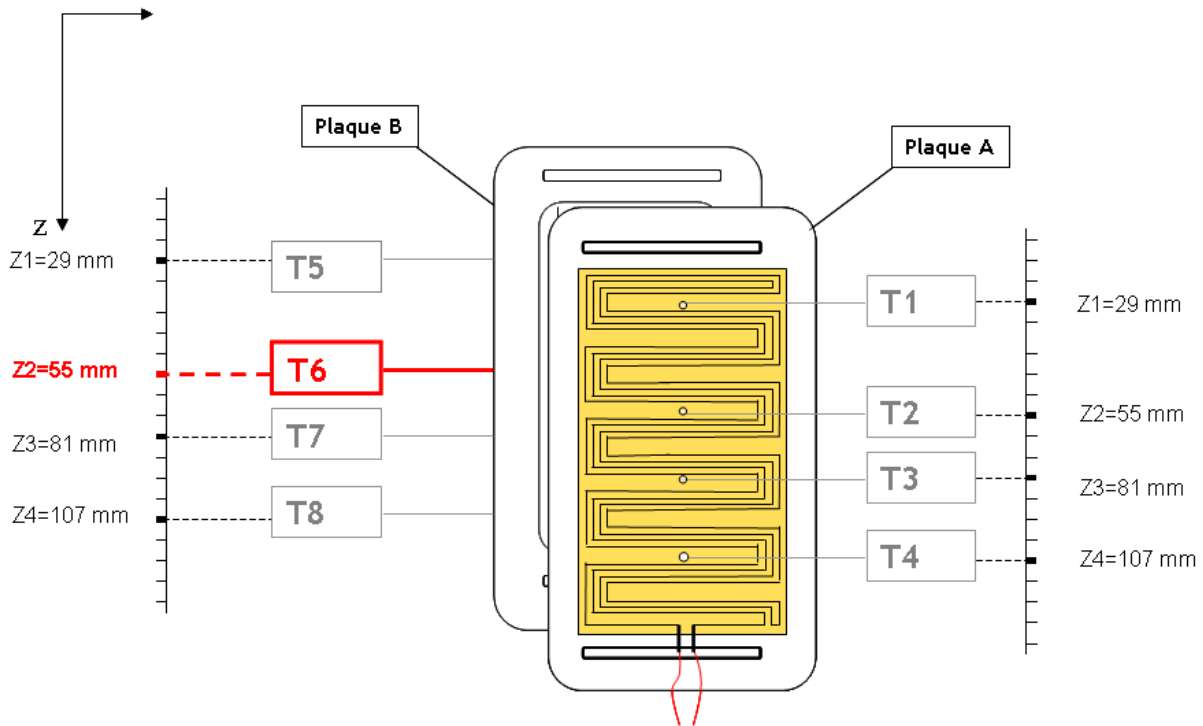


Figure III. 1 Choix du thermocouple de référence pour le suivi de la température de plaque (thermocouple T6)

2.1 Caractérisation thermique du micro-contacteur

L'évaporation du film liquide est induite par la puissance de chauffe fournie. Le flux de chauffe électrique dissipé par effet Joule à travers la plaque est défini comme le rapport entre la puissance électrique totale imposée sur l'aire de chauffe totale (tenant en compte des deux plaques). Il s'exprime comme suit:

$$q_{elec} = 2UI / 2S_{elec} = UI / S_{elec}$$

Equation III- 1

Chapitre III : caractérisation du système expérimental et étude du transfert thermique dans le micro-contacteur à film tombant

Avec $S_{élec} = L_{élec}w_{élec}$ (m^2) où $L_{élec}$ et $w_{élec}$ représentent les dimensions (longueur et largeur respectivement) de l'élément chauffant en contact avec la plaque micro-rainurée.

Il est nécessaire de différencier la puissance électrique dissipée à travers le contacteur et le flux de chaleur réellement acheminée au film binaire compte tenu des déperditions thermiques.

En régime stationnaire, le bilan de chaleur appliquée au volume de contrôle (schématisé sur la figure III.2) s'écrit comme suit :

$$Q = Q_{imposé} - Q_{perdue} = D.h_V + S.h_S - A.h_A \quad \text{Equation III- 2}$$

Q est la quantité de chaleur réellement transmise au film liquide. Il s'agit de la somme de la quantité de chaleur utile à l'échauffement du liquide et à son évaporation. Rappelons que cette quantité de chaleur est connue par mesure du débit évaporée. Pour un mélange binaire, lors de son évaporation, chaque corps a une contribution enthalpique différente. La quantité de chaleur Q évaluée ici est donc la chaleur utile à l'évaporation (somme de la chaleur latente et de la chaleur sensible).

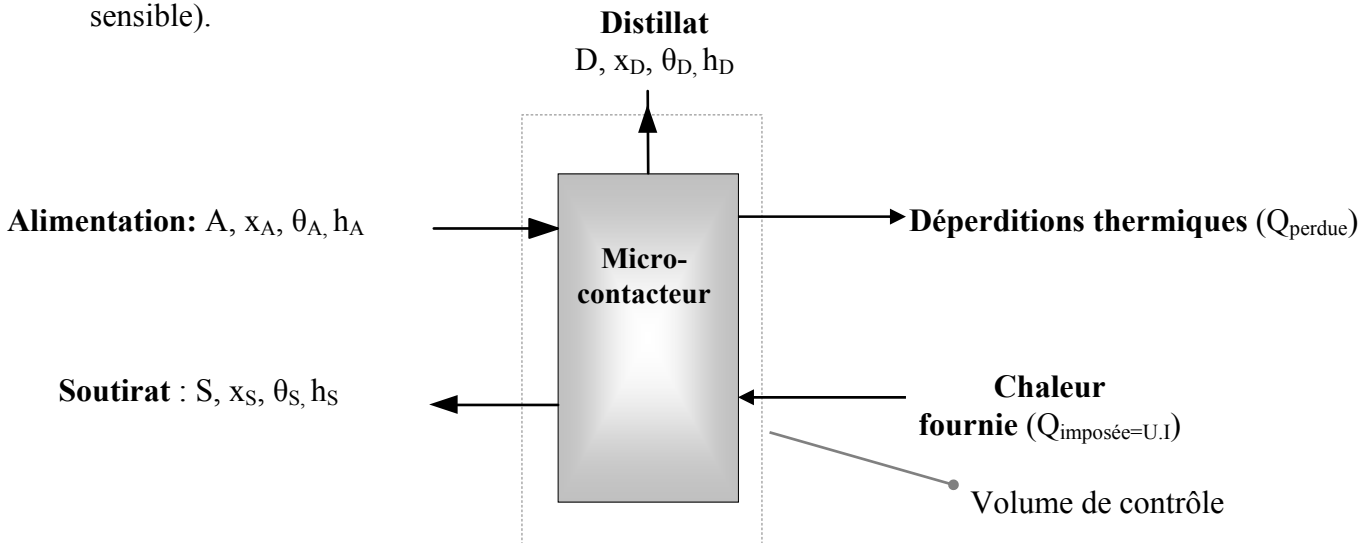


Figure III. 2 : Bilan de chaleur aux bornes du micro-contacteur à films tombants

Chapitre III : caractérisation du système expérimental et étude du transfert thermique dans le micro-contacteur à film tombant

La densité de flux de chaleur transférée au liquide se définit comme étant le rapport de la quantité de chaleur Q sur la surface du film en contact avec la paroi. L'expression peut s'écrire comme suit :

$$q_{transf} = \frac{Q}{S_{liq}} = \frac{Q}{2w_{nc}L_p} \quad \text{Equation III- 3}$$

2.2 Evaluation du coefficient de transfert de chaleur

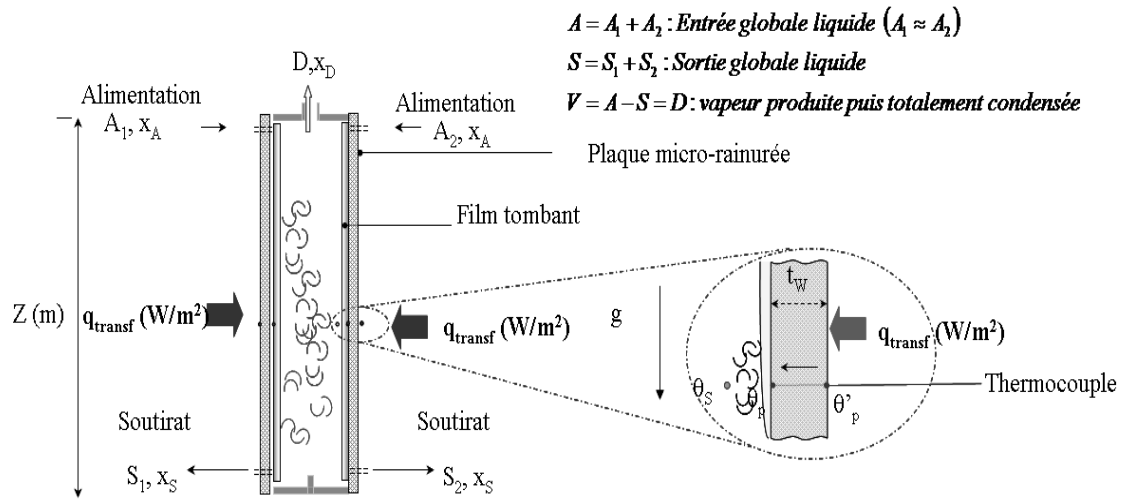


Figure III. 3: Méthode d'évaluation du coefficient de transfert thermique

Dans le cas de faibles taux d'évaporation, l'épaisseur du film ainsi que le coefficient de transfert de chaleur sont pratiquement constants.

En régime laminaire (sans nucléation au sein du film liquide), la théorie de Nusselt [Nusselt, 1916] suppose que la chaleur est transférée par conduction depuis la paroi chaude jusqu'à l'interface liquide/vapeur où a lieu le changement de phase.

Webb et Gupte (1992) ont particulièrement insisté sur le fait que le flux de chaleur total imposé (q_{elec}) ne doit pas être employé pour calculer le coefficient de transfert thermique, mais qu'il faut plutôt utiliser la quantité de chaleur réellement transférée (q_{transf}).

Le coefficient local de transfert de chaleur s'exprime comme suit (Palen *et al.* (1994) et Chun *et al.* (1971)) :

$$h = \frac{q_{transf}}{\theta_p - \theta_s} \quad \text{Equation III- 4}$$

q_{transf} correspond au flux de chaleur réellement transféré au liquide. Il est déterminé par bilan de chaleur aux bornes du micro-contacteur (cf. paragraphe 3.1).

θ_s est la température de saturation du film liquide, θ_p représente la température de la paroi en contact avec le film liquide. Cette température est évaluée en appliquant l'équation de Fourier de conduction de la chaleur à travers la paroi en laiton (cf. Figure III.3).

La loi de Fourier s'exprimant comme suit :

$$q_{transf} = \lambda_{laiton} \cdot \frac{\theta'_p - \theta_p}{t_w} \quad \text{Equation III- 5}$$

avec θ'_p , la température externe de la paroi mesurée par un thermocouple, t_w étant l'épaisseur de la plaque.

Une réécriture de l'équation de Fourier permet de calculer θ_p comme suit :

$$\theta_p = \theta'_p - \frac{q_{transf} \cdot t_w}{\lambda_{laiton}} \quad \text{Equation III- 6}$$

La température de la vapeur saturante (θ_s) est connue par mesure directe de la vapeur sortant de la cellule.

Ainsi connaissant le flux de chaleur transféré au liquide (q_{transf}), la différence de température ($\theta_p - \theta_s$), le coefficient local de transfert de chaleur (h) peut être calculé.

3 Résultats expérimentaux

Dans cette section, on a présenté les résultats expérimentaux de l'étude du transfert thermique lors de l'évaporation de l'éthanol pur.

On a d'abord effectué une analyse détaillée de l'influence du flux de chauffe et du débit puis l'identification des différents régimes d'ébullition observés au sein du microcontacteur à film tombant.

3.1 Identification des régimes d'ébullition et mise en évidence des zones sèches

La figure III.4 montre l'évolution de la température centrale de la plaque en fonction du flux de chaleur électrique pour différents débits d'alimentation. On constate pour l'ensemble des débits, une augmentation de la température de la plaque en fonction de la puissance de chauffe. Cette évolution est de type loi puissance.

On peut y différencier principalement deux zones : une zone où les températures de plaques augmentent faiblement avec le flux de chauffe électrique (zone1) jusqu'à une valeur d'environ de 3500 à 3700 W/m^2 suivie d'une autre zone caractérisée par des températures élevées (zone2).

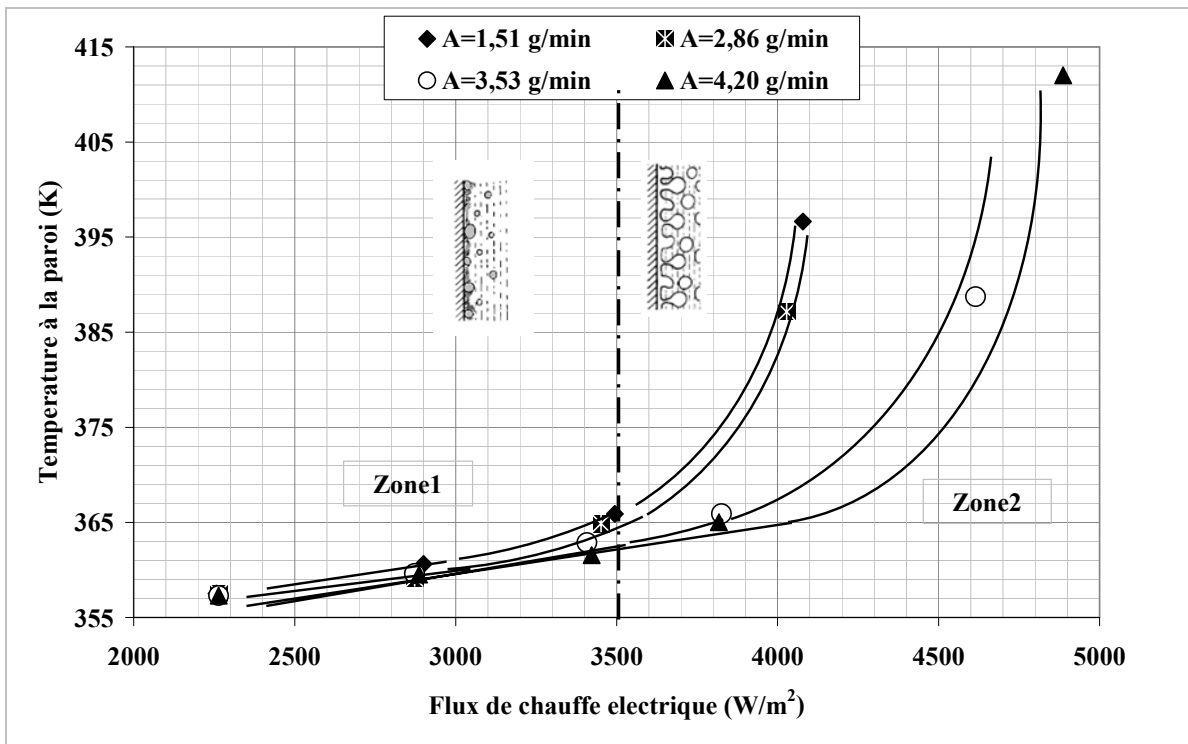


Figure III. 4: Evolution de la température de la plaque (au milieu de la plaque) en fonction du flux de chauffe électrique, pour différents débits d'alimentation, cas de l'éthanol pur.
Plaque n° 3 : $W_C/d_C=5$, $D_h=0.33mm$

Nous interprétons cette transition par un changement de régime d'ébullition.

La figure III.4 montre que le changement de régime est fonction du débit de liquide. En effet plus le débit de liquide augmente, plus cette zone de transition est repoussée vers des valeurs plus élevées de flux de chauffe. Cette valeur seuil du flux de chauffe, est nommée flux de chauffe maximum.

Une telle augmentation de la température peut être expliquée par l'assèchement partiel et intermittent de la couche liquide à la paroi. Lorsque la paroi chauffée est en contact avec de la vapeur, la chaleur ne sera pas bien transférée au sein du film liquide tombant, ce qui va dégrader le coefficient d'échange de chaleur et se traduit par une augmentation de la température à la paroi, l'effet contraire pourrait se produire (diminution de la température aux flux élevés) lorsque le film liquide remouille la paroi.

Une fois le flux de chaleur critique atteint, la surface chauffée devient quasiment sèche et sa température présente une croissance très rapide, on entre alors dans la zone de déficience du liquide.

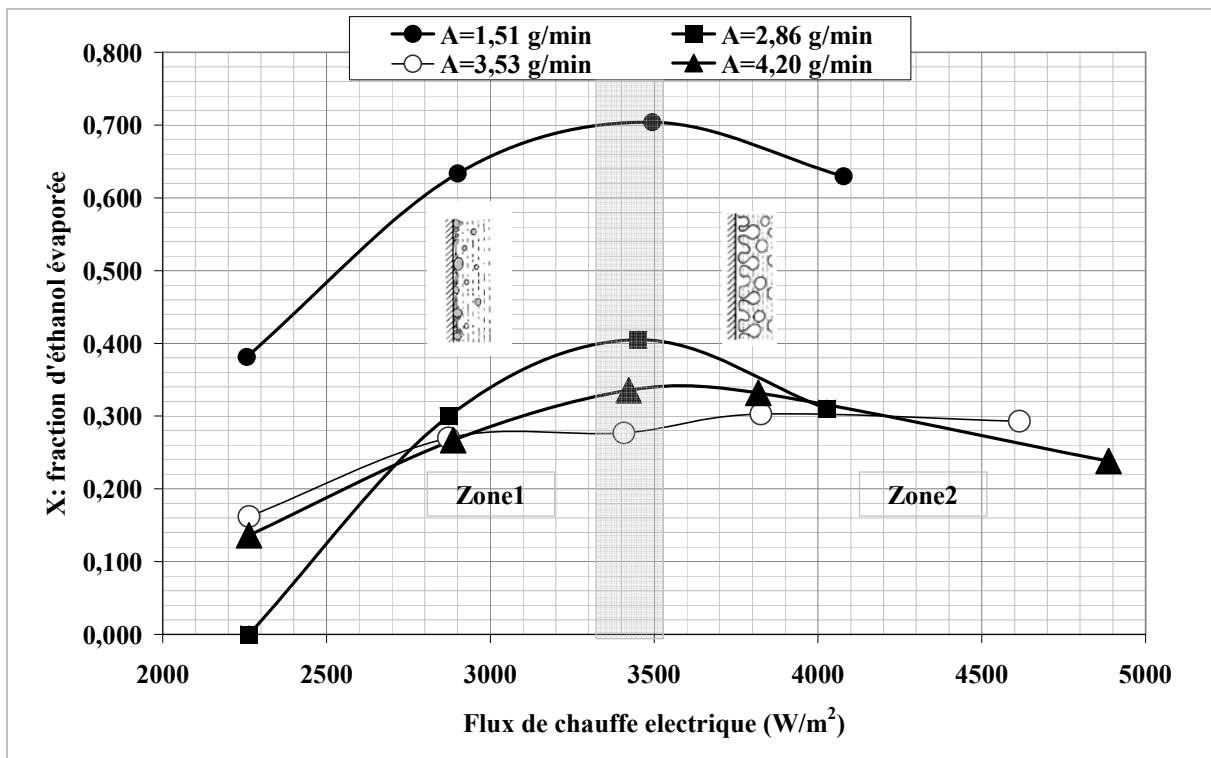


Figure III. 5: Evolution du taux d'éthanol évaporé en fonction du flux de chauffe électrique, pour différents débits d'alimentation, cas de l'éthanol pur. Plaque n° 3 : $W_c/d_c=5$, $D_h=0,33\text{mm}$

On a reporté sur la figure III.5, l'évolution de la fraction d'éthanol évaporée en fonction du flux de chauffe électrique. Pour l'ensemble des débits d'alimentation, on observe des évolutions présentant une fraction évaporée maximale là où la valeur du flux de chauffe est maximum.

Il est bien connu que les zones sèches peuvent subvenir aux flux de chauffe élevés. Dans ces conditions des bulles se forment et soumettent à la plaque chauffée des changements rapides de températures, à l'image des sauts brusques de températures observés à $q=q_{\max}$ sur la figure III.4.

En effet, au-delà de la valeur seuil du flux de chaleur, on peut remarquer une chute du taux d'évaporation (figure III.5), signe d'instabilités dans le mode d'évaporation et/ou du mode d'écoulement du film tombant. On peut associer la chute du taux d'évaporation à l'apparition des zones sèches.

Zaitsev *et al.* (2009) soutiennent que lors de l'ébullition nucléée instable, la surface de chauffe est partiellement recouverte d'un film mince et métastable sur laquelle de nombreuses zones sèches apparaissent et disparaissent rapidement.

Ce phénomène d'assèchement des plaques met donc une limite effective à la quantité évaporée qui peut prendre place dans le micro-contacteur, d'où une diminution du taux d'évaporation aux flux de chauffes électriques élevés.

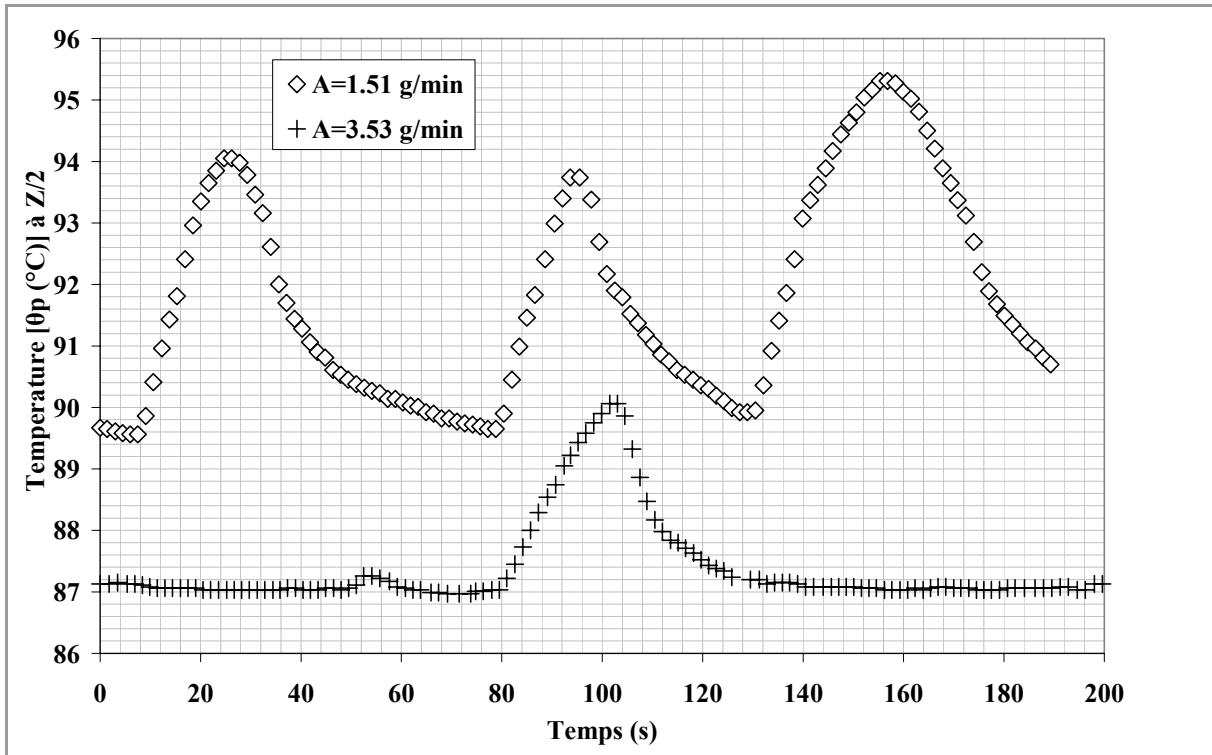


Figure III. 6 : température de la plaque (au milieu de plaque) en fonction du temps à $q_{\text{élec}}=3443\text{W/m}^2$, éthanol pur. Plaque n° 3 : $W_C/d_C=5$, $D_h=0,33\text{mm}$

Afin de mieux comprendre les mécanismes d'apparition des zones sèches, on a tracé sur la figure III.6, à puissance de chauffe électrique fixe ($q_{\text{élec}}=3443\text{ W/m}^2$), l'évolution de température de paroi en fonction du temps pour deux débits d'alimentation ($A=1,52\text{ g/min}$ et $A=3,56\text{ g/min}$).

- Au faible débit d'alimentation $A=1,52\text{ g/min}$, on peut remarquer des oscillations périodiques de la température. Aussi, le niveau de la température moyenne est beaucoup plus élevé que dans le cas d'un fort débit ($A=3,56\text{ g/min}$).

Les fluctuations de température peuvent être attribuées à un comportement instable dans le régime d'ébullition, et suggèrent la présence de zones sèches accompagnées par une phase de surchauffe de la paroi suivie par une phase de remouillage de celle-ci. Tout se passe comme si les zones sèches apparaissent par intermittences.

- Avec un débit d'alimentation de $A=3,56\text{ g/min}$, la température de la paroi présente très peu de fluctuations. Ce comportement peut être associé à un état plus stable d'ébullition nucléée, la fréquence des fluctuations de températures est faible, ceci laisse penser qu'à ce débit, on n'est pas

dans une phase poussée de formation des zones sèches. Ainsi avec l'augmentation du débit de liquide, l'apparition des zones sèches est repoussée vers des valeurs plus élevées de flux de chauffe électrique.

Toutefois, le plus souvent les interprétations classiques d'instabilités en ébullition ne peuvent pas être systématiquement transposées à la situation actuelle à cause de la particularité du dispositif d'étude qui allie à la fois la technologie des micro-canaux et des films tombants. La complexité des phénomènes s'y déroulant nécessite une analyse de résultats expérimentaux et une confrontation avec les données de la littérature. Cette analyse permettra aussi une meilleure différenciation entre les régimes observés dans le micro-contacteur à films.

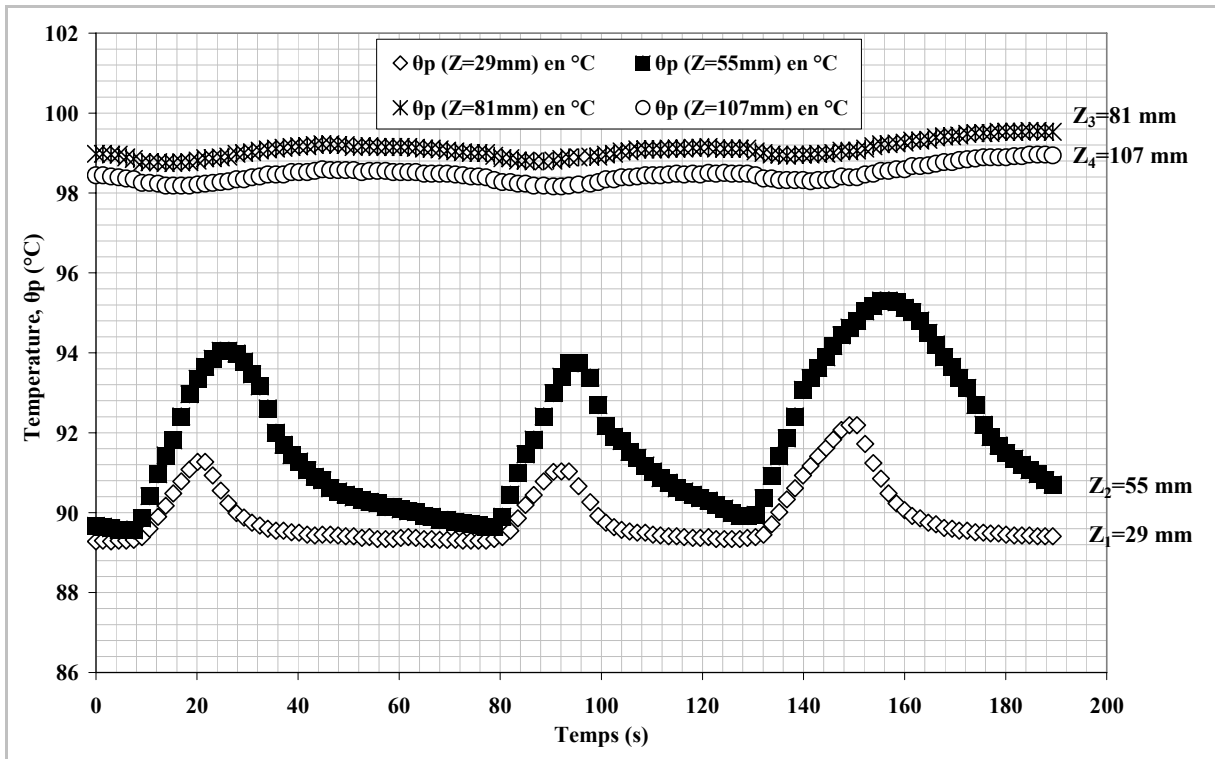


Figure III. 7 : Température de la plaque en fonction du temps à $Z=29\text{mm}$, $Z=55\text{mm}$ et $Z=107\text{mm}$ - $q_{\text{elec}}= 3494 \text{ W/m}^2$, $A=1,52 \text{ g/min}$, éthanol pur. Plaque n° 3 : $W_C/d_C=5$, $D_h=0,33\text{mm}$

Afin de montrer la répartition de la température dans le contacteur, les mesures de températures axiales ont été effectuées.

La figure III.6 représente l'évolution temporelle de la température de la plaque en quatre points de mesures (T5 à T8). Du fait de leur placements (coté arrière du microcontacteur cf. Figure

III.1), les mesures de températures sont plus précises, car contrairement à celles relevées par les thermocouples placés au devant du microcontacteur, ceux-ci peuvent être perturbés par des mouvements fortuits.

La figure III.7 montre que le système n'est pas homogène en température.

En effet entre l'entrée et la sortie du micro-contacteur, du fait de l'évaporation du film liquide tombé sur la plaque, un gradient de température apparaît suivant l'axe z (sens de l'écoulement du film tombant).

3.2 Longueurs caractéristiques

On peut s'intéresser à la longueur d'établissement thermique et la comparer aux longueurs des canaux dont on dispose afin de montrer l'influence (ou non) des longueurs d'établissement thermique et hydrodynamique sur les écoulements donc sur les transferts thermiques.

La longueur d'établissement thermique (L_{th}) se définit comme étant la longueur au-delà de laquelle, le coefficient de transfert de chaleur local devient constant.

Ainsi sur la longueur d'établissement thermique, le coefficient local de transfert de chaleur varie, et devient constant une fois cette longueur dépassée, on entre alors dans la région dite établie thermiquement.

Shah et London (1978) ont proposé pour différentes géométries de canaux soumises à des flux de chauffe constants, des valeurs de longueurs d'entrée thermique adimensionnelle (L_{th}^*) permettant de calculer la longueur d'établissement thermique (L_{th}). Ces dernières sont reliées par la relation suivante :

$$L_{th}^* = \frac{L_{th}}{D_h Pr_L Re_L} \quad \text{Equation III- 7}$$

Les corrélations qui permettent de calculer la longueur d'établissement thermique sont différentes selon qu'on soit en régime laminaire ou turbulent. Pour les canaux rectangulaires, Phillips (1987) suggère $L_{th}^* = 0,1$, ce qui permet de réécrire l'équation III- 7 comme suit : $L_{th} = 0.1 D_h Pr_L Re_L$.

Dans les conditions d'un débit d'alimentation de $A=1,52\text{g/min}$ et d'un flux électrique imposé de 3494W/m^2 ($Re_L=1,7$ et $Pr_L=7,24$), le diamètre hydraulique de la plaque 3 est $D_h=0,33\text{mm}$. En faisant l'application numérique, on trouve comme longueur d'établissement thermique $L_{th}=0,406\text{mm}$.

De la même manière on peut calculer la valeur de la longueur d'établissement hydrodynamique (L_{hyd}) qui représente la longueur nécessaire pour passer d'un profil de vitesse uniforme à un profil de vitesse avec un profil complètement établi. A partir de l'entrée du film liquide dans les micro-canaux, le profil de vitesse commence à se développer sur toute la longueur jusqu'à atteindre le profil de vitesse d'Hagen-Poiseuille.

La longueur d'entrée hydrodynamique L_{hyd} est donnée par l'équation suivante :

$$L_{hyd}^* = \frac{L_{hyd}}{D_h Re_L} \quad \text{Equation III- 8}$$

Pour les canaux rectangulaires, la valeur de L_{hyd}^* la plus acceptée est de 0,05 [Shah et London].

On évalue la longueur d'entrée hydrodynamique à $L_{hyd}=0,028\text{mm}$.

On trouve une longueur d'entrée thermique de $L_{th}=0,406\text{mm}$ et une longueur d'entrée hydrodynamique de $L_{hyd}=0,028\text{mm}$.

L'hypothèse selon laquelle l'écoulement est pleinement développé est valable car les longueurs d'entrée thermique et hydrodynamiques sont largement inférieures à la longueur du canal.

Le comportement des températures oscillantes le long de la plaque ne peut donc a priori être attribué au non établissement des écoulements le long des plaques d'évaporation, mais très probablement à la formation de zones sèches par intermittences, supposées responsables de la fluctuation des températures.

3.3 Influence du flux de chauffe et du débit

Dans ce qui suit, on se propose d'étudier l'influence du flux de chauffe et du débit lors de l'évaporation du film tombant d'éthanol à différents flux de chauffes et débits d'alimentation. Une analyse du transfert permettra de mieux différencier les régimes d'ébullition observés dans le microcontacteur.

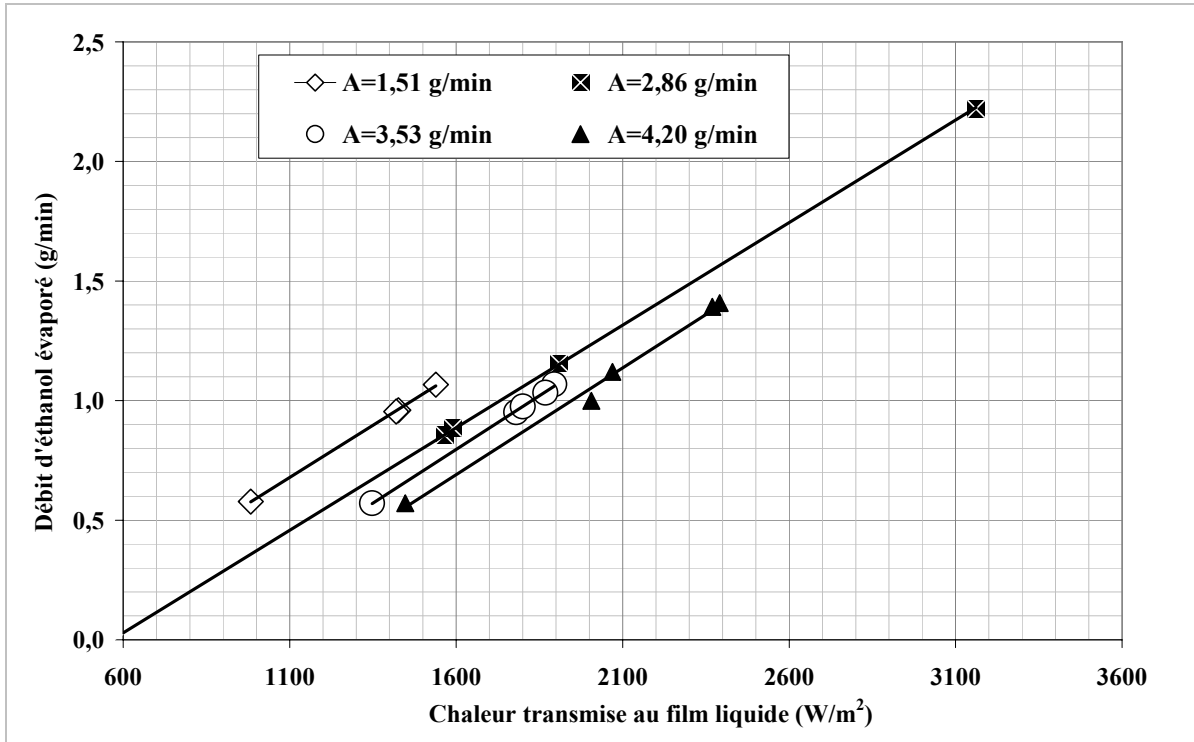


Figure III. 8: Evolution du débit d'éthanol évaporé en fonction du flux de chauffe transféré au liquide, pour différents débits d'alimentation, cas de l'éthanol pur. Plaque n° 3 : $W_C/d_C=5$, $D_h=0,33\text{mm}$

La figure III.8 représente l'évolution du débit d'éthanol évaporé en fonction du flux de chauffe réellement transmis au film liquide pour différents débits d'alimentation. Le flux de chauffe réellement transféré au liquide est calculé compte tenu des pertes thermiques.

Les bilans massique et thermique nous permettent d'écrire :

$$\Phi_{transf} = A C_p \Delta T + D L_v \quad \text{Equation III-9}$$

où Φ_{transf} représente la puissance de chauffe fournie au liquide, celle-ci se décompose en deux termes :

$ACp \Delta T$: ce terme correspond à la quantité de chaleur sensible servant à chauffer le film liquide le long du micro-contacteur, ce terme équivaut à la chaleur sensible qui comme on peut le voir est une fonction croissante du débit d'alimentation.

$D.Lv$: ce terme correspond à la chaleur latente utilisée pour réaliser l'évaporation d'une partie du débit d'alimentation.

Pour un flux de chauffe (Φ_{transf}) constant, une augmentation du débit induit une valeur plus élevée du terme de chaleur sensible, diminuant de fait le débit d'éthanol évaporés.

De même, pour un débit d'alimentation donné, une augmentation du flux de chaleur transféré au film implique une augmentation du débit évaporé. Ce résultat est conforme au bilan d'énergie de l'équation III-9.

En effet, la température d'entrée de d'alimentation est d'environ 50°C, étant donnée la température d'ébullition de l'éthanol (78°C), une certaine quantité d'énergie est nécessaire pour que le liquide atteigne sa température ébullition et puisse s'évaporer.

La figure III.8 traduit donc directement la relation du bilan de l'équation III-9 où $\frac{I}{L_v}$ représente le

coefficient directeur et $\frac{-FC_p \Delta T}{L_v}$ l'ordonné à l'origine.

Ces comportements montrent qu'il est préférable de travailler à de faibles débits (films minces) pour avoir de meilleurs taux d'évaporation, toutefois comme on le verra par la suite, il existe des limites en terme de débit et de flux de chauffe qu'il faut contrôler au risque de faire apparaître des zones sèches qui dégradent le transfert de chaleur.

Une autre façon de représenter l'évaporation de l'éthanol est de tracer la fraction évaporée (X) en

fonction du rapport flux de chauffe transférée sur le débit d'alimentation : $\frac{q_{transf}}{A}$.

En reprenant le bilan de l'équation III-9 on peut, en posant $X=D/A$ réécrire que :

$$X = \frac{\Phi_{transf}}{ALv} - \frac{C_p \Delta T}{Lv} \quad \text{Equation III-10}$$

Sachant que : $\Phi_{transf}=S.q_{transf}$ où, S est la surface totale d'échange entre le film tombant et la paroi, q_{transf} est le flux de chauffe transféré au liquide.

On obtient finalement :

$$X = \frac{S q_{transf}}{Lv A} - \frac{C_p \Delta T}{Lv} \quad \text{Equation III-10}$$

On peut ainsi tracer sur la figure III.9, la fraction vaporisée (X) en fonction du rapport $\frac{q_{transf}}{A}$.

On remarque que l'on a comme coefficient directeur, le rapport $\frac{S}{Lv}$ et pour ordonnée à l'origine

le terme $-\frac{C_p \Delta T}{Lv}$.

La figure III.9, montre que toutes données expérimentales d'évaporation de l'éthanol pur se retrouvent sur une seule et même droite linéaire de coefficient directeur, $\frac{S}{Lv}=1E-08 \text{ m}^2 \cdot \text{kg} \cdot \text{J}^{-1}$ et

d'ordonnée à l'origine, $-\frac{C_p \Delta T}{Lv}=-0,1586$.

On retrouve pour la surface de chauffe : $S \sim 0,008 \text{ m}^2$, cette valeur est bien inférieure à la surface effective d'évaporation (égale à la surface d'échange des deux plaques symétriques :

$$S_{effective}=2 \times S_L=2 \times 0,006 \text{ m}^2=0,012 \text{ m}^2).$$

Ceci peut s'expliquer du fait de l'apparition de zones sèches empêchant l'occupation de toute la surface de chauffe disponible.

La figure III.9 permet connaissant le flux de chauffe réellement transféré au liquide et le débit à traiter, de déterminer le taux d'éthanol pur susceptible d'être évaporé dans le micro contacteur à film tombant. On peut potentiellement atteindre des taux d'évaporation élevés ($X=0,80$) pour des débits de l'ordre de 2,9g/min

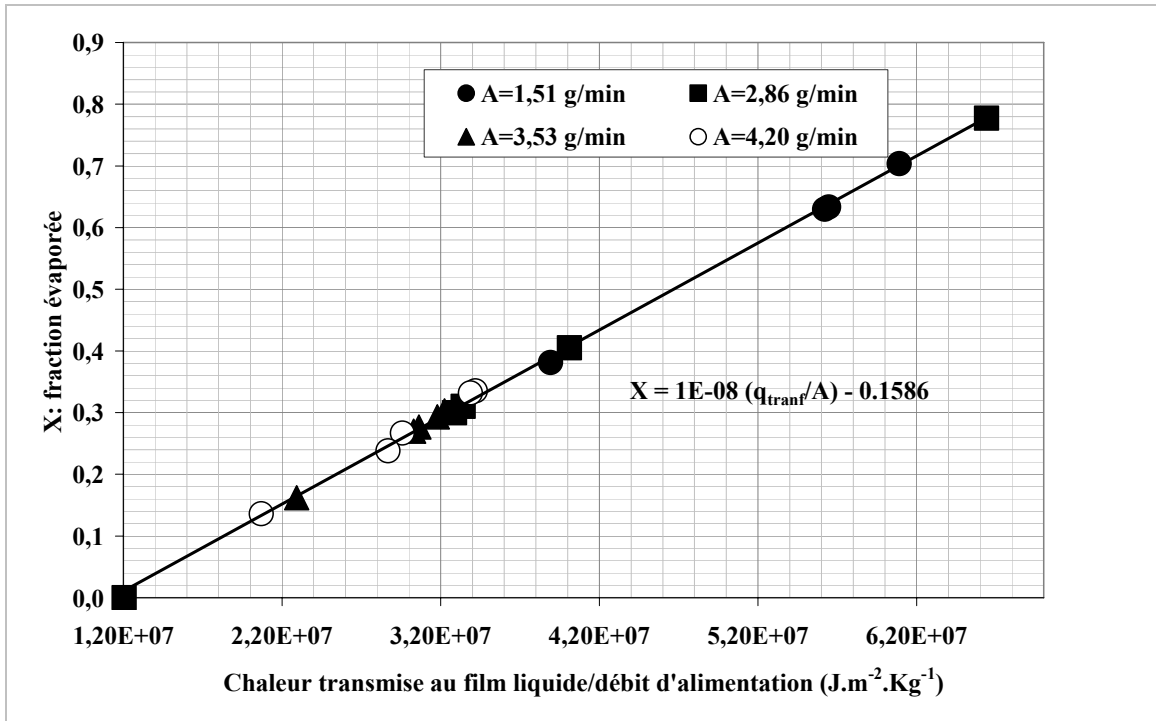


Figure III. 9: Evolution du débit d'éthanol évaporé en fonction du flux de chauffe transféré au liquide, pour différents débits d'alimentation, cas de l'éthanol pur. Plaque n° 3 : $w_C/d_C=5$, $D_h=0.33mm$

La figure III.10 montre l'évolution du flux de chaleur transféré au film en fonction de la différence entre la température de la plaque et la température de saturation de l'éthanol ($78\text{ }^\circ\text{C}$), ce à différents débits d'alimentation. On y reconnaît l'évolution typique de la courbe d'ébullition identifiée par Nukiyama (1934).

Pour l'ensemble des débits d'alimentation étudiés, on constate qu'à faible différence de température entre la plaque et la température de saturation ($<10^\circ\text{C}$), les points expérimentaux se positionnent de manière identique. La puissance transmise au film est proportionnelle à l'écart de température. Au delà de 10°C d'écart, le flux atteint sa valeur maximale et décroît avec l'écart de température.

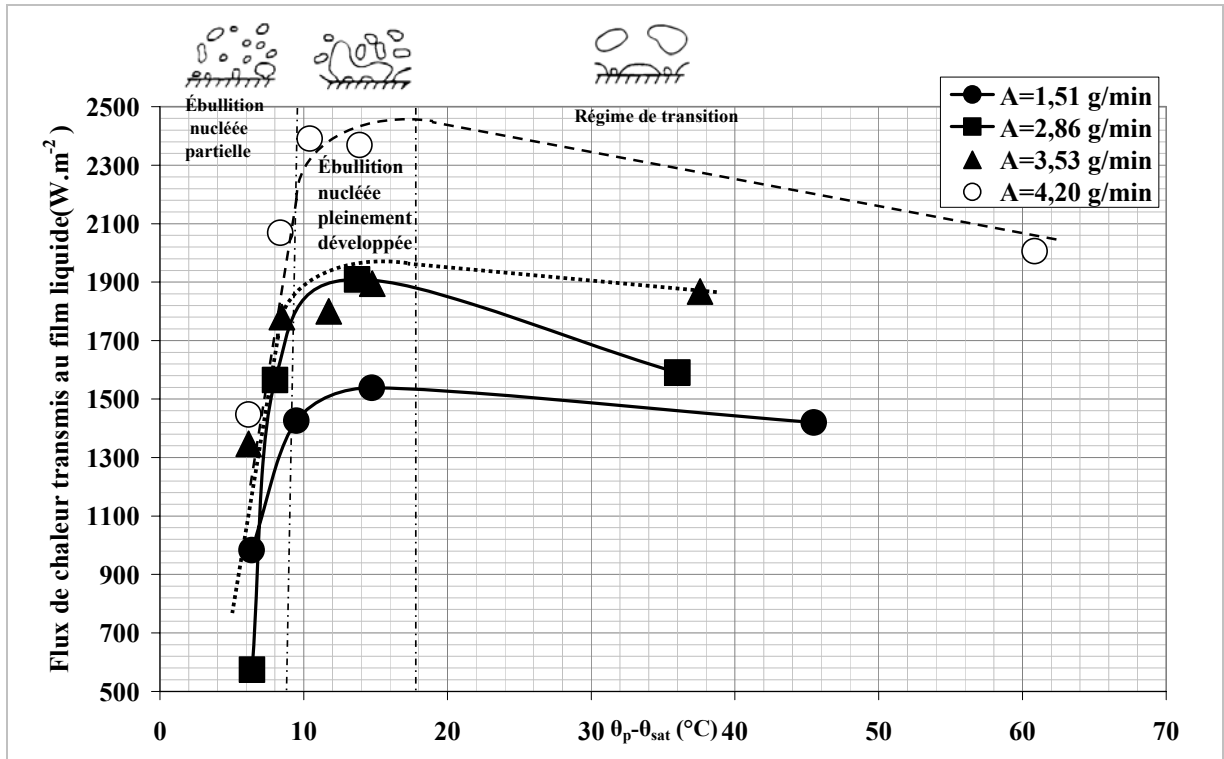


Figure III. 10: Evolution de flux de chauffe transféré au film liquide en fonction de la différence entre la température de la plaque et la température de saturation-pour différents débits d'alimentation, cas de l'éthanol pur. Plaque n° 3 : $W_C/d_C=5$, $D_h=0,33\text{mm}$

On peut par analogie à la courbe d'ébullition de Nukiyama, y identifier trois différents régimes d'ébullition.

Nous interprétons ces résultats de la manière suivante :

À une certaine valeur de la surchauffe de la paroi, des bulles de vapeur apparaissent. Ceci correspond au début de l'ébullition nucléée. Les bulles se forment dans les cavités des microcanaux qui contiendraient des microbulles préexistantes.

Aux différences de températures inférieures à 10°C , le transfert de chaleur d'ébullition est caractérisé par l'ébullition nucléée partielle où la phase liquide mouille régulièrement la surface des plaques.

Après l'initialisation de l'ébullition, une augmentation importante de la pente de la courbe d'ébullition est observée. A ce stade des bulles provenant des sites actifs de la surface de chauffe

sont libérées de façon aléatoire. La densité des sites actifs d'ébullition et la fréquence des bulles se détachant augmentent avec la surchauffe de la paroi.

D'après Nukiyama (1934), après la zone d'ébullition nucléée partielle, il vient une zone appelée d'ébullition nucléée pleinement développée. Cette zone est difficile à différencier avec le régime d'ébullition nucléée partielle mais précède le maximum de flux de chauffe.

Dans cette région, le flux de chaleur transmis au liquide est proportionnel à $\Delta\theta^m$ où m est compris entre 3 et 4.

Un faible changement de pente de la courbe d'ébullition marque la transition entre l'ébullition nucléée pleinement développée et une zone appelée « zone de transition ».

Avec une augmentation accrue des zones sèches comme observée sur les figures III.6 et 7, le maximum du flux de chaleur transféré q_{\max} marque la fin de l'ébullition nucléée pleinement développée.

Ce flux de chauffe maximum est tributaire du débit traité, en effet pour un degré de surchauffe donné, plus le débit est élevé, plus grand est le flux de chauffe maximum transféré. L'explication viendrait du fait qu'aux débits élevés un meilleur mouillage des plaques est assuré, ce qui limite ainsi la formation des zones sèches, connues comme principales responsables du mauvais transfert de la chaleur.

On observe ainsi, sur la figure III.10 que, plus le débit d'alimentation est élevé, plus grand sera le flux de chauffe maximum associé.

Le régime dit "de transition" est très instable car caractérisé par une diminution du flux de chaleur transféré et une augmentation de la surchauffe à la paroi. Cette région est caractérisée par une très forte présence de vapeur sur la paroi, ce qui empêche le mouillage correct de la paroi par le film liquide. Ainsi, une fine couche de vapeur se forme entre la paroi et le liquide, entraînant une dégradation progressive du transfert de chaleur.

Du fait des fortes fluctuations du flux de chauffe transféré et de la température de la paroi, il est difficile d'obtenir des données fiables en régime de transition.

On voit néanmoins clairement qu'il existe principalement deux régimes matérialisés par le maximum du flux de chaleur transféré au fluide.

Le principal mécanisme pouvant causer la rupture du film est la thermo-capillarité (Effet Marangoni), elle résulte de la variation de tension de surface due au gradient de température au sein même du film. Toutefois lors de l'ébullition nucléée et aux flux de chauffes élevés, un débit important de vapeur est formé dans le micro-contacteur. Cette vapeur circulant à contre courant du film liquide peut créer par frottement, une contrainte tangentielle de cisaillement qui est phénomène concurrent à l'effet Marangoni. Cette concurrence entre ces deux effets peut donc induire la perturbation de l'écoulement du film liquide, et accentuer les zones sèches.

4. Coefficients de transfert de chaleur

Les coefficients de transfert de chaleur peuvent être déduits à partir des résultats présentés précédemment, car connaissant le flux de chaleur transféré au film liquide et la différence de température entre la paroi et la température de saturation, on peut évaluer le coefficient de transfert par le biais de l'équation suivante :

$$h_L = \frac{q_{transf}}{\theta_p - \theta_{sat}} \quad \text{Equation III-11}$$

La figure III.11 montre les courbes d'évolution du coefficient de transfert thermique (h_L) en fonction de $\Delta\theta = \theta_p - \theta_{sat}$ pour quatre débits d'alimentation.

A faible écart de température entre la paroi et la température de saturation ($<10^\circ\text{C}$), on obtient des valeurs plus élevées du coefficient de transfert, les coefficients étant d'autant plus élevés que le débit d'alimentation est grand. Notons toutefois que les valeurs atteintes restent relativement modestes, de l'ordre de 150 à 250 $\text{W/m}^2.\text{C}$. Puis le coefficient de transfert diminue progressivement avec l'écart de température entre la paroi et la température de saturation.

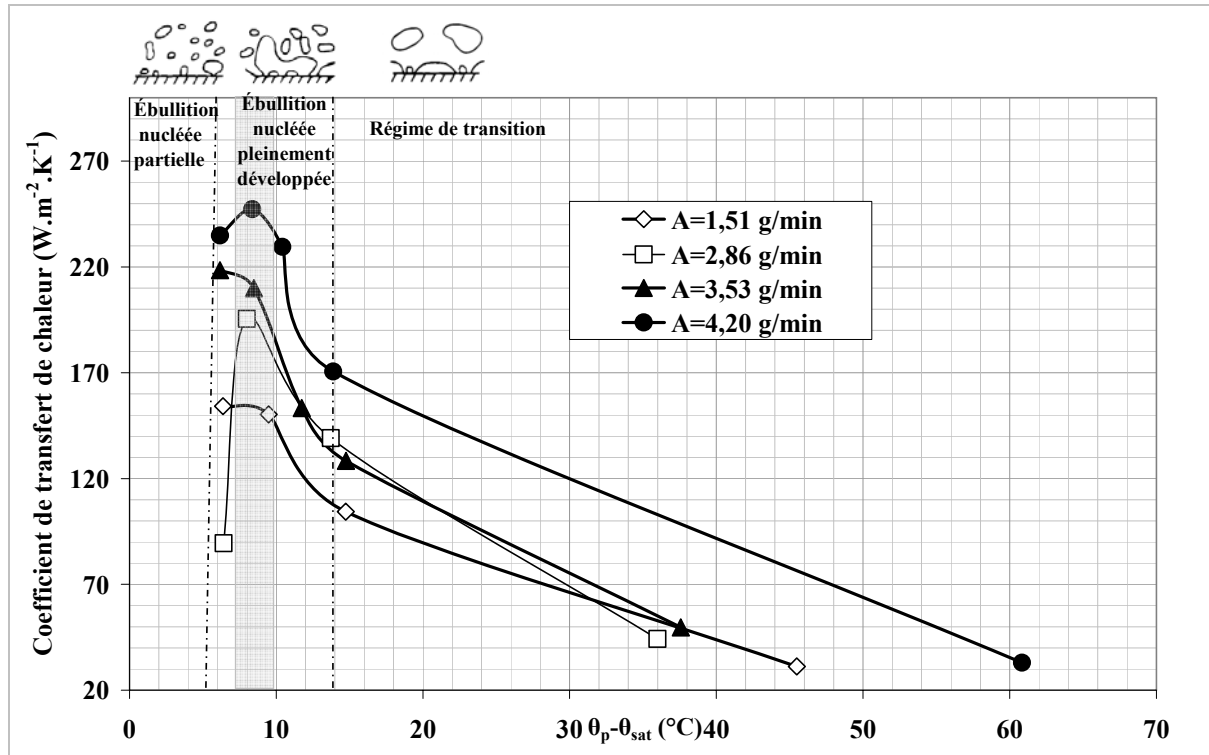


Figure III. 11: Evolution du coefficient de transfert de chaleur en fonction de la différence entre la température de la plaque et la température de saturation-pour différents débits d'alimentation, cas de l'éthanol pur. Plaque n° 3 : $W_C/d_C=5$, $D_h=0,33\text{mm}$

Pendant la phase d'ébullition nucléée, le transfert de chaleur est intense, le coefficient de transfert de chaleur augmente jusqu'à atteindre une valeur maximale. Le coefficient de transfert thermique dépend fortement de la surchauffe.

Avec l'augmentation de la différence de température ($\Delta\theta$), le régime de transition est atteint provoquant une diminution du coefficient de transfert thermique.

Ce phénomène s'explique par le fait que le transfert de chaleur s'effectue uniquement par conduction dans la couche de vapeur, dans cette partie, les zones sèches se forment et persistent tant que la surchauffe augmente, si bien qu'il s'en suit une diminution brusque du coefficient de transfert de chaleur.

L'assèchement semble être favorisé dans les micro-canaux en raison du confinement et de l'état de surface. Plusieurs études rapportent la difficulté d'étudier et de corréler le coefficient de transfert thermique en micro-canaux en présence de zones sèches Thome (2004) et Chen (2004).

Pour ces raisons, les corrélations disponibles dans la littérature ne permettront pas de prédire avec précision les mesures en ébullition dans la zone de transition.

La zone de transition est la moins étudiée car les mécanismes régissant les transferts de chaleur dans cette zone sont mal connus si ce n'est qu'ils semblent être affectés par les mêmes variables que celles qui interviennent dans l'ébullition nucléée.

Dans ses travaux, Berenson (1961) conclut que le régime de transition est une combinaison des régimes d'ébullition nucléée et d'ébullition pelliculaire⁴ existant de manière intermittente sur la surface.

Les comparaisons de nos données expérimentales avec des corrélations établies pour les micro-canaux et pour les films tombants nous aideront à mieux différencier et expliquer l'évolution des tendances observées.

4.1 Comparaisons avec les corrélations établies pour les micro-canaux

La figure III.12 compare nos résultats expérimentaux avec quelques corrélations choisies de la littérature relatives au transfert thermique en microcanaux. Elle représente l'évolution du nombre de Nusselt (Nu) en fonction du nombre de Reynolds(Re_L).

⁴ Phénomène d'ébullition correspondant au développement d'une couche continue de vapeur au contact de la surface chauffante et séparant celle-ci du liquide bouillant

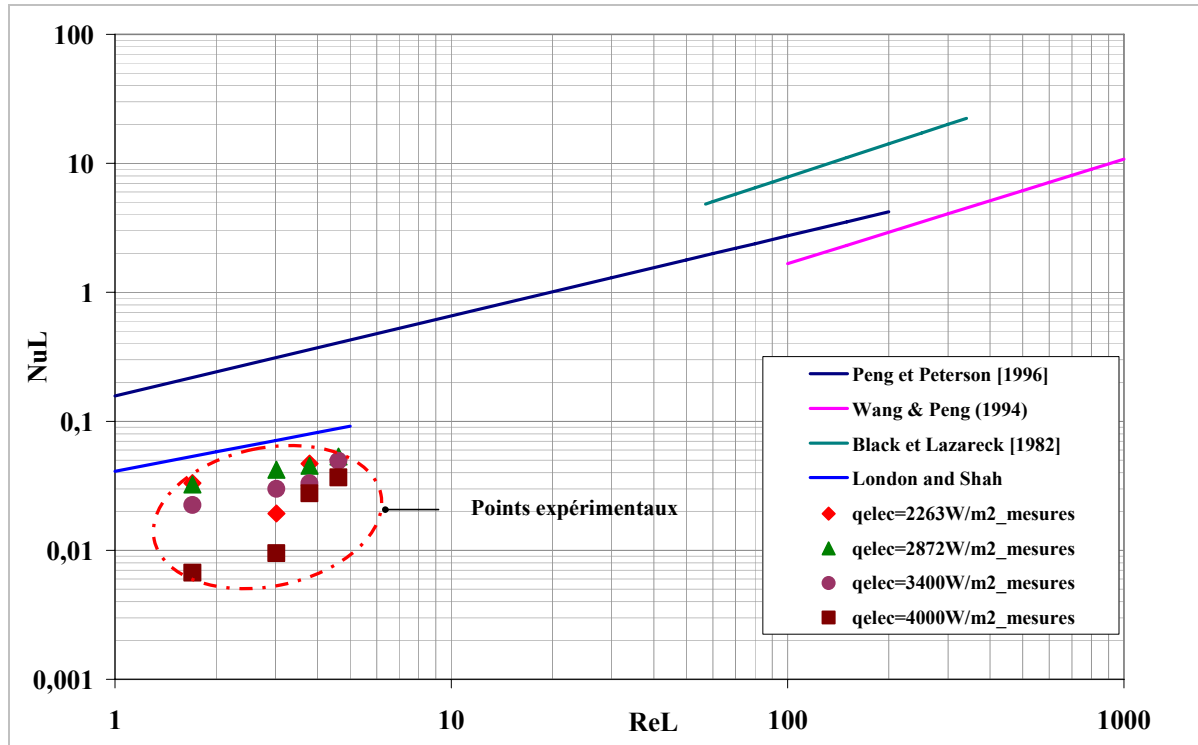


Figure III. 12: Evolution du Nombre de Nusselt (Nu_L) en fonction du nombre de Reynolds(Re_L) : corrélations établies pour les micro-canaux. Comparaison des résultats expérimentaux avec les corrélations de la littérature.

Les corrélations choisies sont les suivantes :

La corrélation de Peng et Peterson (1996), est établie pour des écoulements horizontaux d'eau dans des micro-canaux rectangulaires et parallèles. Les diamètres hydrauliques sont compris entre 0,133 et 0,75mm. La section d'essai est chauffée électriquement. Rappelons aussi que cette corrélation est spécifique aux études d'écoulements en simple phase.

La corrélation de Wang et Peng (1994) concerne l'étude expérimentale de l'ébullition en microcanaux lors de l'écoulement d'un liquide (eau) sous-refroidi. Les auteurs constatent que pour une température de plaque légèrement supérieure à la température de saturation, l'ébullition nucléée pleinement développée est atteinte et que le régime d'ébullition nucléée partielle n'est pas observable. Les microcanaux utilisés dans leur étude sont identiques à ceux utilisées par Peng et Peterson (1996).

La corrélation de Lazarek et Black (1982) est établie pour des minicanaux circulaires de diamètre hydraulique égal à 3.15 mm. Le liquide réfrigérant utilisé est le R-113 (Trichlorotrifluoroéthane).

Les auteurs ont identifié que le régime de transfert thermique dominant est l'ébullition nucléée.

En régime laminaire, Thome et Jacobi (2004) recommandent la corrélation de Shah et London afin d'évaluer le nombre de Nusselt local lors de l'ébullition nucléée.

Nos résultats obtenus lors de l'ébullition de l'éthanol pur ont été placés sur la figure III.12.

Pour nos points expérimentaux ainsi que les valeurs déterminées à partir des corrélations de la littérature, on constate une évolution croissante du nombre de Nusselt en fonction du nombre de Reynolds.

Pour les faibles nombres de Reynolds (laminaire), les valeurs expérimentales se trouvent dans le même ordre de grandeur que celles des corrélations de London et Shah, cependant comparées aux valeurs trouvées via les corrélations de Peng et Peterson (1996), Wang et Peng (1994) et de Lazarek et Black(1982), nos points expérimentaux se trouvent bien en-dessous.

Nous proposons de modéliser les nombres de Nusselt obtenus expérimentalement par le biais du modèle général : $Nu = a Re_L^b Pr_L^c$.

Dans notre cas expérimental, le nombre de Prandtl est constant et égal à 7,24 (éthanol pur), le terme « Pr_L^c » est donc constant. La valeur de la constante c est arbitrairement fixé à 1/3 compte tenu de la forte proximité de nos points expérimentaux avec ceux obtenus par la corrélation de Shah et London.

Pour les séries correspondantes à la zone d'ébullition nucléée, le nombre de Nusselt a été expérimentalement mesuré pour des nombre de Reynolds de 1,7 ; 3 ; 3,8 et de 4,6 et pour des flux de chauffe électrique de $q_{\text{élec}}=2263\text{W/m}^2$ et de $q_{\text{élec}}=2872\text{W/m}^2$.

On a déterminé les paramètres a, b et c par régression linéaire selon le critère des moindres carrés et avons obtenu la corrélation suivante :

$$Nu = 0,012 Re_L^{0,46} Pr_L^{1/3} \quad \text{Equation III-12}$$

	Coefficients	Ecart-type
a	0,012	-
b	0,46	0,001
c	1/3	-

Tableau III. 2: Valeurs des coefficients la corrélation proposée et incertitudes

La figure III.13 représente le nombre de Nusselt corrélé en fonction du nombre de Nusselt calculé à partir des expériences réalisés lors de l'ébullition de l'éthanol. La dispersion des points autour de la droite d'équation $Nu_{corr}=Nu_{calc}$ est assez faible sauf pour les flux de chauffe élevés ($q_{elec}=3400W/m^2$ et $q_{elec}=4000W/m^2$) où la dispersion est plus importante.

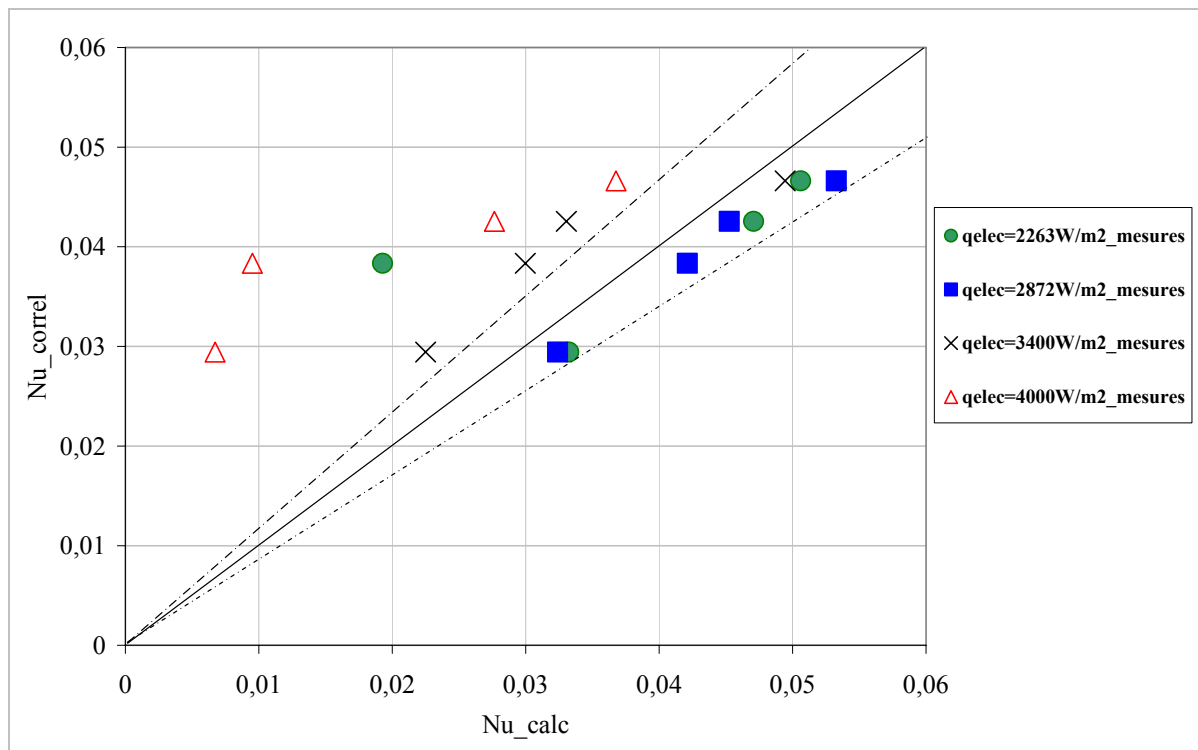


Figure III. 13 : Comparaison entre nos données expérimentales et quelques corrélations établies pour les micro-canaux

Ceci indique que le modèle déterminé concorde bien avec les points expérimentaux obtenus pour la zone d'ébullition nucléée, mais au-delà, c'est-à-dire en régime de transition, la corrélation n'est plus efficace du fait de l'apparition de zones sèches.

Bien que le formalisme de la corrélation présentée ici ($Nu = 0,012 Re_L^{0,46} Pr_L^{1/3}$) corrèle bien nos points expérimentaux pour les faibles flux de chauffe ($q_{elec}=2263W/m^2$ et $q_{elec}=2872 W/m^2$). Il convient toutefois de rappeler qu'en régime d'ébullition nucléée, Nu_L dépend aussi et surtout de q_{elec} (i.e. q_{transf}) ou de $\Delta\theta$, en plus des propriétés thermo-physiques du film liquide et assez peu du régime d'écoulement fixé par Re_L . C'est dans ce sens que l'équation de Fujita et Ueda (1978) établie en ébullition nucléée de film tombant est la plus adaptée pour représenter nos données expérimentales.

D'une manière générale, il apparaît que les corrélations basées sur le mécanisme d'évaporation convective donnent des résultats peu satisfaisants, alors que celles établies sur l'ébullition nucléée conviennent mieux. Ceci étant en accord avec le fait que l'ébullition nucléée est le mécanisme dominant dans nos expériences et du fait qu'en tout état de cause il est quasi impossible de modéliser le régime de transition du fait des fortes instabilités aux flux de chauffes élevés (e.g. zones sèches, caléfaction..)

4.2 Comparaisons avec les corrélations établies pour les films tombants

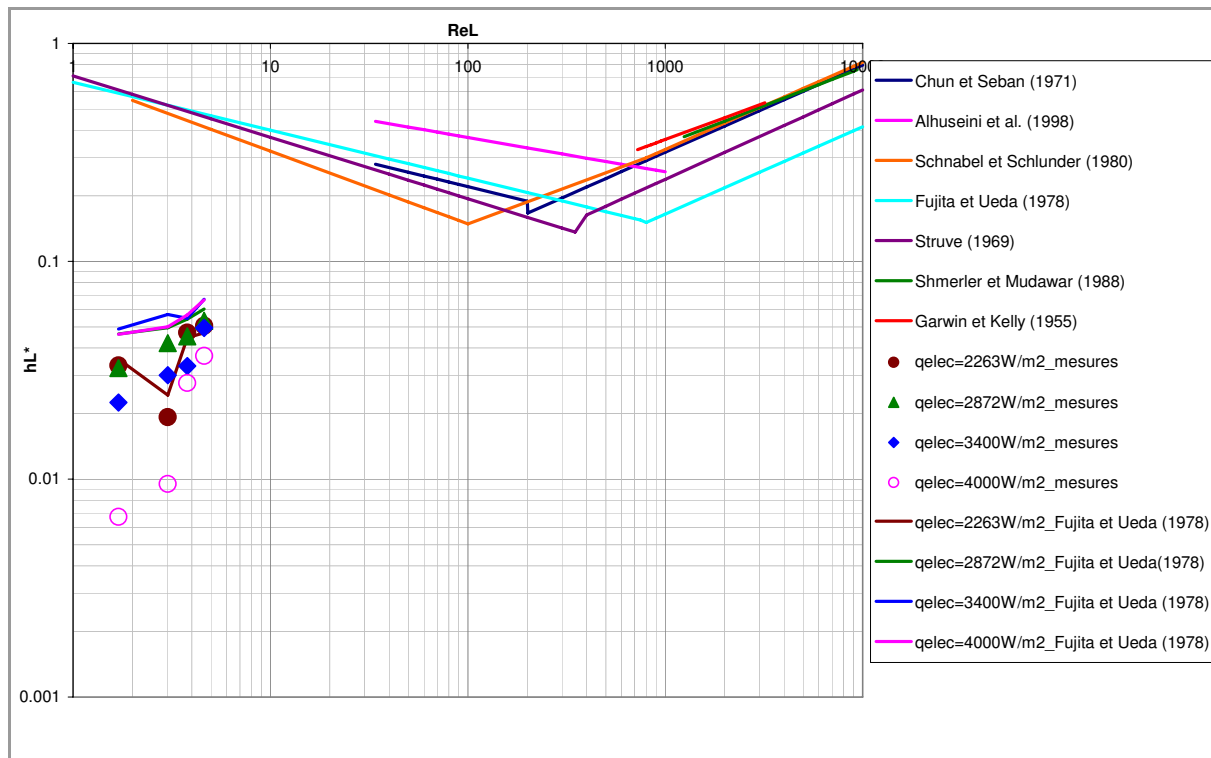


Figure III. 14: Evolution du coefficient de transfert de chaleur adimensionnel (h^*_L) en fonction du nombre de Reynolds(Re_L) pour un film tombant en évaporation. Comparaison des résultats expérimentaux avec les corrélations de la littérature.

On se propose de comparer nos données expérimentales d'ébullition d'éthanol avec les corrélations données dans la littérature dans le cas de l'évaporation de films tombants sans ébullition nucléée (voir Chapitre I).

Sur la figure III.14 est représenté le coefficient de transfert de chaleur adimensionnel (h^*_L) en fonction du nombre de Reynolds (Re_L) pour un film tombant en évaporation pure sans ébullition nucléée. Nous y avons ajouté nos points expérimentaux lors de l'évaporation de l'éthanol pur.

D'une manière générale, on constate que nos points expérimentaux sont largement inférieurs aux valeurs données par les corrélations de la littérature (de dix à cent fois plus faibles).

On observe également que nos valeurs de coefficients de transfert de chaleur adimensionnel (h^*_L) ont une allure croissante en fonction du nombre de Reynolds (Re_L), comportement caractéristique en régime turbulent pour les corrélations de la littérature, bien que nos points expérimentaux soient établis en régime laminaire.

Les corrélations établies pour l'ébullition non-nucléée surestiment donc nos mesures.

Il apparaît clairement que le formalisme de ces corrélations met en avant la dépendance du coefficient de transfert thermique au nombre de Reynolds, puisqu' en ébullition non nucléée, l'évaporation a lieu au niveau de l'interface du film liquide à évaporer, le coefficient de transfert de chaleur h_L est donc peu dépendant du flux de chaleur ou du degré de surchauffe $\Delta\theta$.

En ce qui concerne la corrélation de Fujita et Ueda (1978) établie pour des films tombants verticaux, en régime d'ébullition nucléée pleinement développée sans assèchement, elle prédit de façon satisfaisante nos résultats expérimentaux avant l'apparition des zones sèches (cf. Figures III.14).

En effet aux faibles flux de chauffe ($q_{\text{élec}}=2263 \text{ W/m}^2$ et $q_{\text{élec}}=2872 \text{ W/m}^2$) les résultats sont prédits de manière fiable. Cependant, aux flux de chauffe élevés ($q_{\text{élec}}=3400 \text{ W/m}^2$ et $q_{\text{élec}}=4000 \text{ W/m}^2$), elle devient moins performante, car bien que les prédictions se rapprochent de nos valeurs, la corrélation les surestime légèrement.

Ce comportement aux flux de chauffe élevés n'est pas surprenant puisque la corrélation de Fujita et Ueda (1978) est valable uniquement en ébullition nucléée sans apparition de zones sèches. Dans notre cas, la condition d'applicabilité de cette corrélation n'est pas satisfaite aux flux de chauffés élevés ($q_{\text{élec}}=3400 \text{ W/m}^2$ et $q_{\text{élec}}=4000 \text{ W/m}^2$), car à ces valeurs de flux de chauffe on

observe l'apparition des zones, d'où les écarts entre les prédictions de l'équation de Fujita et nos données aux flux de chauffe élevés.

Afin de mieux préciser, les interprétations précédentes, la figure III.15, regroupe tous les points expérimentaux d'ébullition d'éthanol et les confronte aux prédictions de Fujita et Ueda. On voit bien que la corrélation de Fujita est satisfaisante pour les faibles flux de chauffe où le régime d'ébullition nucléée domine et est moins fiable pour les flux de chauffe élevés.

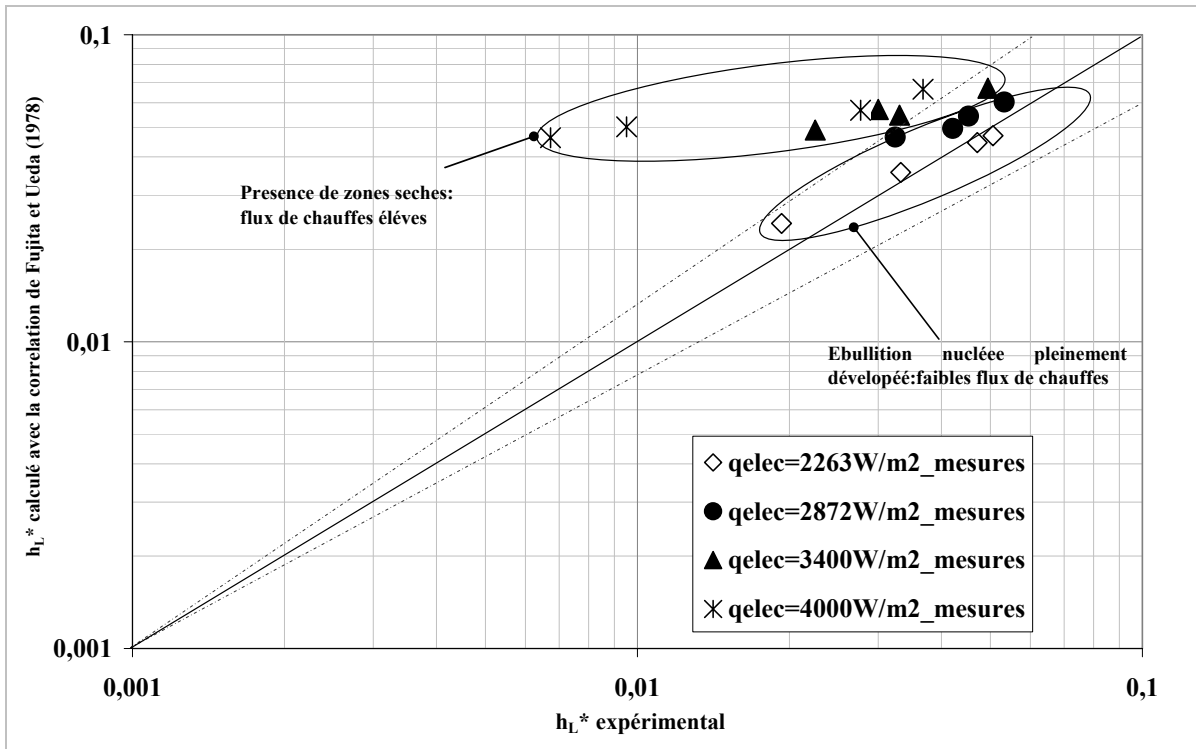


Figure III. 15 : Prédications de nos mesures par la corrélation de Fujita et Ueda (1978)

5 Différences d'ébullition entre l'éthanol pur et le mélange binaire éthanol/propanol.

Dans le cas de l'ébullition d'un mélange binaire, l'allure générale de la courbe d'ébullition de Nukiyama est considérablement modifiée. Les principales modifications intervenantes ont été étudiées par Collier et Thome (1996) et illustrées sur la figure III.16.

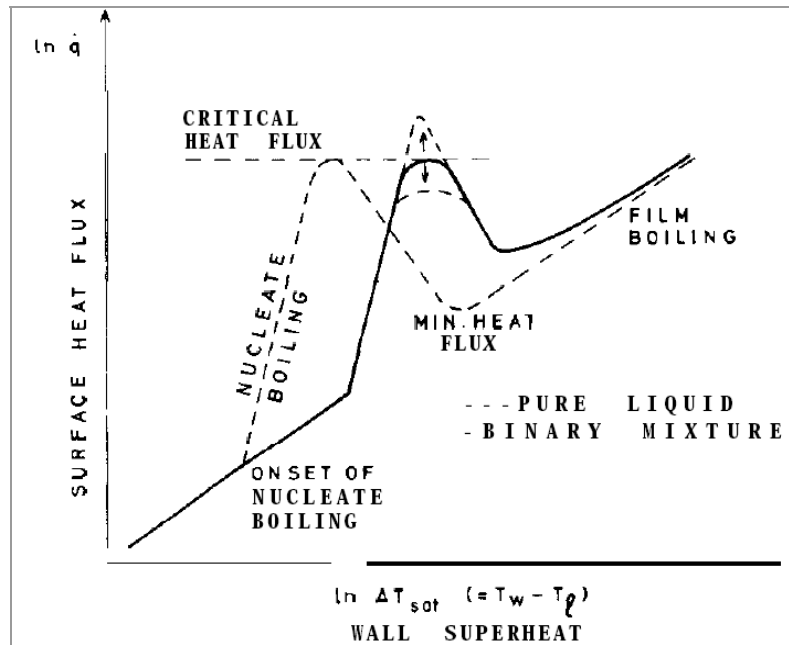


Figure III. 16: Représentation schématique des principaux changements observables lors du passage de l'ébullition d'un composé pur à l'ébullition d'un mélange binaire, Collier et Thome (1996)

On peut noter que, dans le cas d'un mélange binaire, le départ du régime d'ébullition est repoussé vers des valeurs plus élevées du degré de surchauffe $\Delta\theta$.

Dans la zone d'ébullition nucléée, les coefficients de transfert de chaleur du composé pur sont supérieurs à ceux du mélange binaire (Figure III.16).

Thome et Shock (1984) ont remarqué que l'ébullition d'un mélange binaire diffère sensiblement de celle d'un composé pur en raison d'un certain nombre de facteurs dont principalement le titre du mélange.

La courbe proposée par Collier et Thome (1996) est en accord avec bon nombre de travaux expérimentaux faits en évaporation de films tombants binaires [Gropp *et al.* (1981), (1983) et Palen (1996)] qui rapportent que les coefficients de transfert thermique des mélanges binaires pris en régime d'ébullition nucléée sont généralement plus faibles que ceux des composés purs dans les mêmes conditions opératoires.

Ce comportement a tendance à s'inverser dès qu'on entre dans le régime de transition instable où apparaissent les zones sèches.

La figure III.17 compare les courbes d'ébullition entre l'éthanol pur et un mélange binaire éthanol/n-propanol dont la teneur molaire en éthanol est de 46%. Le débit d'alimentation dans le cas de l'éthanol pur et du mélange binaire étant de $A=4,1966\text{g/min}$.

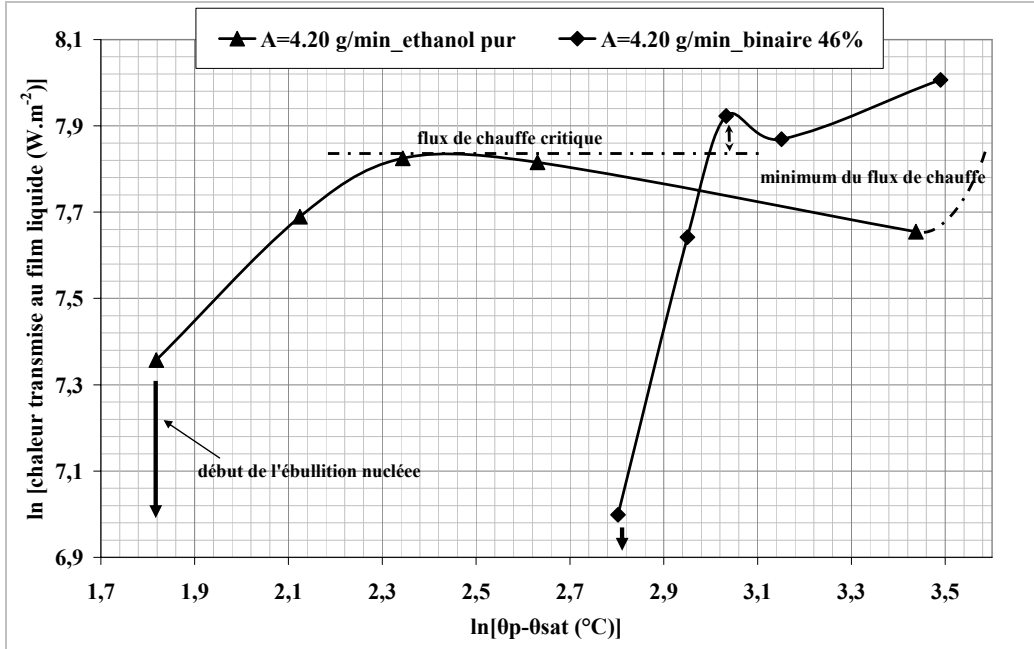


Figure III. 17: Courbes d'ébullition pour un corps pur (éthanol) et pour un mélange (éthanol/n-propanol à 46% d'éthanol)- $2200\text{W/m}^2 < q_{\text{élec}} < 4900\text{W/m}^2$

La courbe d'ébullition d'un mélange binaire est décalée vers la droite par rapport au corps pur, ce qui traduit une dégradation des échanges thermiques (Figure III.17). On constate comme observée par Collier et Thome (1996) que l'apparition de l'ébullition nucléée dans le cas du mélange binaire nécessite une différence de température $\Delta\theta$ plus élevée :

Dans un mélange binaire, du fait de la différence de volatilité des composants, le taux de croissance des bulles en régime d'ébullition nucléée est fonction des transferts de chaleur et du transfert de matière au sein de la phase liquide (Collier et Thome, 1996). Une fois la température d'ébullition du mélange atteinte, le composé le plus volatil s'évapore davantage, laissant une prédominance du composé le moins volatil à l'interface, ce qui a pour effet d'augmenter le degré de surchauffe $\Delta\theta$, conduisant à une diminution du coefficient transfert de chaleur.

Cette réduction du coefficient d'échange peut avoir plusieurs explications, notamment sur le fait que les propriétés thermo-physiques du mélange ne sont pas linéaires avec la composition, de la

dépendance de la température de saturation avec la composition et également par les mécanismes de transfert de matière au sein du film liquide.

Une étude plus détaillée des aspects couplés de transferts de chaleur et de matière sera abordée dans le chapitre IV suivant où il sera question d'étudier et de discuter de la faisabilité expérimentale de la distillation d'un mélange binaire dans un tel dispositif.

Conclusion

L'analyse de nos résultats nous permet désormais d'identifier les différents régimes d'ébullition dans le micro-contacteur à films tombants.

Aux faibles flux de chauffe électriques, nous sommes en présence d'un régime d'ébullition pleinement développé et aux flux de chauffe élevés, en régime d'ébullition avec la formation de zones sèches par intermittence.

Aux flux de chauffe élevés, la fine couche de liquide recouvrant la paroi peut aussi être très instable du fait de la forte vitesse relative de la vapeur qui dans notre cas s'écoulant à contre courant du film liquide tombant.

Ceci favorise encore plus l'assèchement des plaques et diminue d'avantage le coefficient d'échange. D'une certaine manière, il apparaît que l'assèchement des plaques est favorisé du fait de la petite taille des canaux, du confinement des bulles de vapeur et de l'état de surface des plaques.

On remarque qu'à l'exception de la relation de Shah et London, les corrélations établies pour les micro-canaux ne prédisent pas de manière satisfaisante nos données expérimentales car les surestimant de trop, la raison étant que la plupart de ces corrélations sont établies pour des tubes conventionnels.

La corrélation de Fujita et Ueda (1978) établie en films tombants pour l'ébullition nucléée prédit de manière satisfaisante nos résultats dans le cas où il n'existe pas de zones sèches. Il n'en demeure pas moins que corréler les coefficients d'échange dans le cas l'assèchement est un exercice très délicat du fait des instabilités notoires dans ce régime.

**Chapitre IV : Potentiel du micro-contacteur à films
tombants à séparer un mélange binaire éthanol/n-
propanol**

Introduction

Ce présent chapitre s'intéresse au potentiel du micro-contacteur à film tombant à réaliser une séparation. Pour ce faire, l'évaporation d'un mélange binaire test d'éthanol et de n-propanol a été étudiée expérimentalement dans le micro-contacteur.

Ce travail a permis de comprendre l'influence des variables telles que le débit et flux de chauffe électrique, sur la capacité du micro-contacteur à séparer le mélange.

In fine, il s'agit de cerner les conditions expérimentales de faisabilité de cette séparation. Les performances de séparation ont été évaluées en termes d'efficacité d'épuisement et de puissance de séparation.

1 Conditions expérimentales

L'étude expérimentale de l'évaporation du mélange binaire éthanol/n-propanol a été menée à la pression atmosphérique (101,3 kPa). Les flux de chauffe électriques imposés sont compris entre 2 et 5 kW.m⁻². Le débit d'alimentation varie entre 1 et 8 g / min. L'alimentation se compose d'un mélange binaire d'éthanol (composé léger) et n-propanol (composé lourd). L'alimentation titre entre 46 et 48 % en mole du composé le plus volatil (Ethanol). Le nombre de Reynolds du film liquide canalisé est compris entre 1 et 6, le régime est donc laminaire lisse.

L'alimentation est introduite dans le micro-contacteur via la chambre de distribution où elle est préchauffée. Sa température est inférieure à la température de saturation du mélange binaire (θ_{sat}). Le mélange est supposé idéal, et suit donc la loi de Raoult.

Les propriétés thermo-physiques de l'éthanol sont obtenues à partir de la base de données Dortmund Data Bank[®] et ceux de l'équilibre liquide/vapeur grâce à la base de données SIMSCI de Pro/II Inc. Toutes les expériences ont été menées avec la plaque n°3 dont les caractéristiques géométriques sont rappelées dans le tableau VI.1 :

w_P	w_{n_c}	w_C	d_C	w_C/d_C	s_C	n_C	t_W	t_V	Z	$a_{V/L}$	$a_{thermal}$
mm	mm	μm	μm	-	μm	-	mm	mm	mm	m^{-1}	m^{-1}
90	40	1000	200	5	100	36	2	20	150	90	126

Tableau IV. 1: Caractéristiques géométriques de la plaque n°3

Les conditions opératoires ont été consignées dans le tableau VI.2 ci-après :

Grandeurs	Unités	Symbole	Valeurs
Nombre de Reynolds liquide	-	Re_L	1-6
Débit d'alimentation	g/min	A_m	1-8
Epaisseur du film liquide	μm	δ_L	60-145
Flux de chauffe électrique	W/m^2	q_{elec}	2000-5000
Température de saturation de l'alimentation	°C	$\theta_{sat.}$	87
Titre molaire d'alimentation	-	x_A	0,46-0,48

Tableau IV. 2: Conditions opératoires - Plaque n°3

2 Protocole expérimental

Après la mise en route du dispositif expérimental, le régime permanent est atteint après un temps d'attente d'environ 1h10 min (cf. *temps de réponse du système*, paragraphe 3.2 du chapitre II), ce temps est rigoureusement respecté à chaque fois que le débit ou le flux de chaleur est modifié. Dès lors, l'échantillonnage et l'acquisition des températures peuvent être effectués.

Le micro-contacteur présenté dans cette étude peut, par analogie être assimilé à une section d'épuisement d'une colonne de distillation correspondant à la partie inférieure d'une colonne de distillation (zone située en-dessous de l'alimentation). Notons qu'au niveau du micro-contacteur, il n'existe pas de reflux. Autrement dit, la vapeur condensée n'est pas réinjectée dans le dispositif.

Toutes les expériences ont été menées à flux de chaleur contrôlés. Le flux de chauffe électrique dissipée par effet joule (q_{elec}) est calculé comme le rapport de la puissance de chauffe sur la surface de contact. Le flux de chauffe reçu par le film tombant (q_{transf}) est calculé en tenant compte des pertes thermiques (les détails des calculs ont été présentés dans le paragraphe 3.2 du chapitre III).

Les échantillons prélevés au distillat et au soutirat sont analysés par chromatographie en phase gazeuse.

Les débits d'alimentation et de distillat sont mesurés par empotage. Le débit de soutirat est déduit par bilan matière. Afin de s'assurer de la reproductibilité des mesures, certaines expériences sont reconduites.

Le débit de liquide est judicieusement choisi puisque d'une part, il doit être supérieur au débit minimum de mouillage afin de former un film tombant uniforme et éviter la formation de zones sèches, et d'autre part il ne doit pas dépasser une certaine valeur afin d'éviter le débordement des micro-canaux. L'épaisseur du film liquide est donc toujours maintenue inférieure à la profondeur des canaux.

C'est notamment pour cette même raison, que dans cette étude, l'équation de Kapitza (Equation I- 31) est utilisée afin d'évaluer l'épaisseur du film tombant au sein des canaux, ce dernier permettra de prédire le débit optimal d'alimentation.

3 Résultats expérimentaux

La phase vapeur est produite *in situ* et en continu au sein du micro-contacteur. Le liquide riche en composé lourd (n-propanol) et le distillat riche en composé le plus léger (éthanol) sont respectivement obtenus en bas et au sommet du microcontacteur.

Une des caractéristiques essentielles pour la compréhension des résultats présentés dans ce chapitre est la représentation du profil de température sur les plaques. La figure IV.1 montre le profil longitudinal de la température à différents flux de chauffe électrique pour un débit d'alimentation de $4,70 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$.

Un gradient thermique longitudinal est observé entre l'entrée du film tombant (haut de la plaque) et la sortie du film (bas de la plaque). Ce gradient provient de l'évaporation partielle du mélange binaire dont la température d'ébullition dépend de sa composition. Ainsi, au fur et à mesure que film liquide avance sur la plaque, il s'enrichit en composé le plus lourd à savoir le n-propanol. Ce gradient provient d'une part d'une augmentation de la température du mélange jusqu'à sa température d'ébullition ($\theta_{sat.} = 87^\circ\text{C}$, $x_{A, \text{éthanol}} = 0,47$) et d'autre part de l'évaporation préférentielle du composé le plus léger (éthanol) au détriment du plus lourd (n-propanol). A noter bien entendu que l'augmentation du flux de chauffe augmente les températures de la plaque et que celles-ci peuvent être supérieures à la température de saturation du mélange binaire étudié.

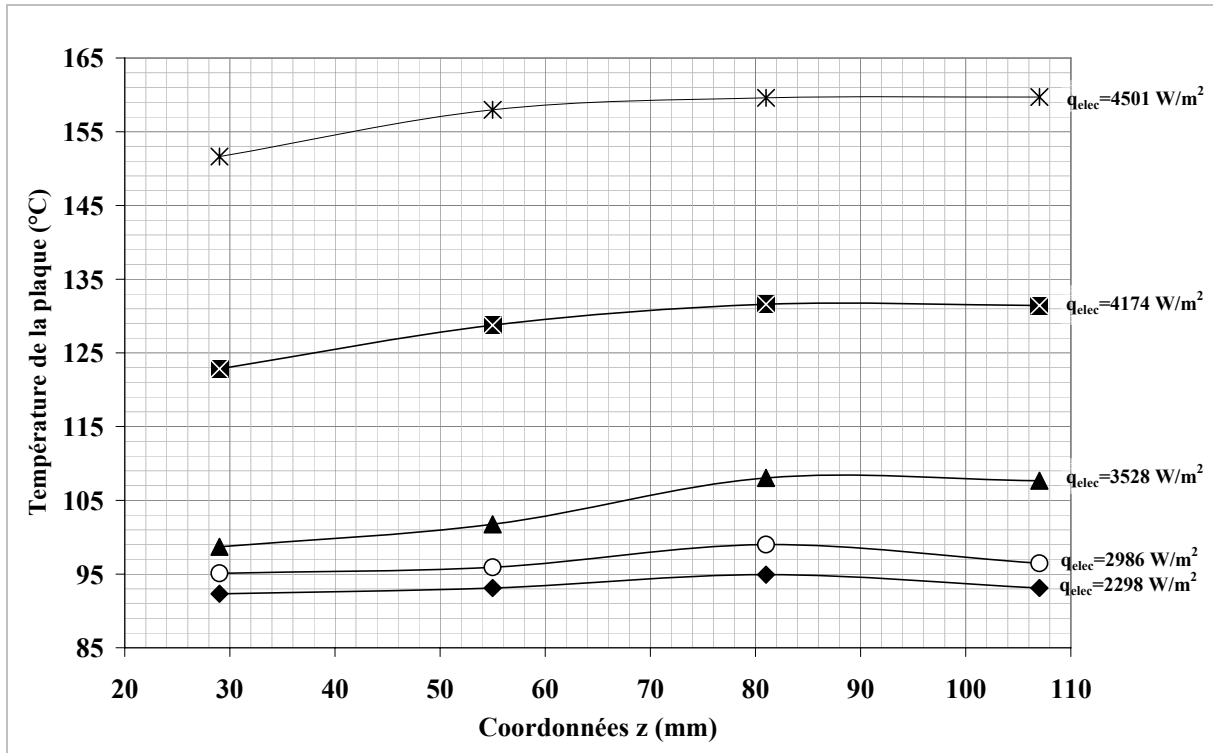


Figure IV. 1: Profil longitudinal de la température à différents flux de chauffe électriques
 ($A=4,70 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$, $x_A=0,46$, $\theta_{sat.}=87^\circ\text{C}$)

Puisque ce séparateur est analogue à la zone d'épuisement d'une colonne de distillation, la performance globale de la séparation a été évaluée à partir du rendement d'épuisement. Celle-ci est se définit en fonction des titres d'alimentation et de soutirat. Elle s'exprime comme suit :

$$E = \frac{x_A - x_S}{x_A} \quad \text{Equation IV- 2}$$

La reproductibilité des mesures a été vérifiée en effectuant plusieurs fois la même série de mesures à débit d'alimentation et à puissance de chauffe électrique fixée. Ces mesures sont consignées dans le tableau IV.3.

Grandeurs	Série 1	Série 2	Série 3	Moyenne	Ecart-type
Titre alimentation (x_A)	46,9%	45,9%	48,5%	47,1%	0,013
Titre soutirat (x_S)	37,8 %	38,3 %	39,9 %	38,7%	0,011
Titre distillat (x_D)	54%	52,2%	51,7%	52,6%	0,012
Efficacité d'épuisement (E)	19,4%	16,6%	17,7%	17,9%	0,014
Température de l'alimentation ($\theta_{alim.}$) [°C]	47,5°C	46,7°C	48,9°C	47,9°C	1,114
dans la chambre de distribution					
Température de la vapeur ($\theta_{distillat}$) [°C]	87,1°C	86,9°C	87,6°C	87,2°C	0,361
Température du soutirat ($\theta_{soutirat}$) [°C]	87,5°	87,1°C	88,1°C	87,6°C	0,503
Débit d'alimentation (A_m) [g/min]	1,52	1,52	1,60	~1,55	0,046
Débit de soutirat (S_m) [g/min]	0,65	0,63	0,67	~0,65	0,020
Débit de distillat (D_m) [g/min]	0,87	0,89	0,93	~0,90	0,031

Tableau IV. 3: Reproductibilité des mesures: P=101,3 kPa – q_{elec} =2986 W.m⁻²

3.1 Régimes d'ébullition

La figure IV.2 illustre l'évolution de la température au milieu de la plaque en fonction du flux de chauffe électrique, pour un débit d'alimentation fixé à $4,70 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$.

Tout d'abord, en-dessous de 3500 W.m^{-2} , la température de la plaque est inférieure à celle de saturation du mélange éthanol/n-propanol.

Ensuite, aux flux de chauffe élevés, au dessus de $q_{elec}=3500 \text{ W/m}^2$, il se produit une augmentation rapide de la température de la plaque. Ceci conduit à une importante surchauffe de la plaque. Les valeurs des températures sont nettement supérieures à celle de saturation du mélange. L'explication peut se trouver dans l'évaporation de la phase liquide. Dans un premier temps, la chaleur fournie est « sensible ». L'épaisseur du film liquide est relativement constante. La résistance au transfert varie donc peu si ce n'est avec la température. Par contre lorsque la

température du film atteint la température de saturation, l'épaisseur du film diminue à cause de l'évaporation du liquide qui peut être totale.

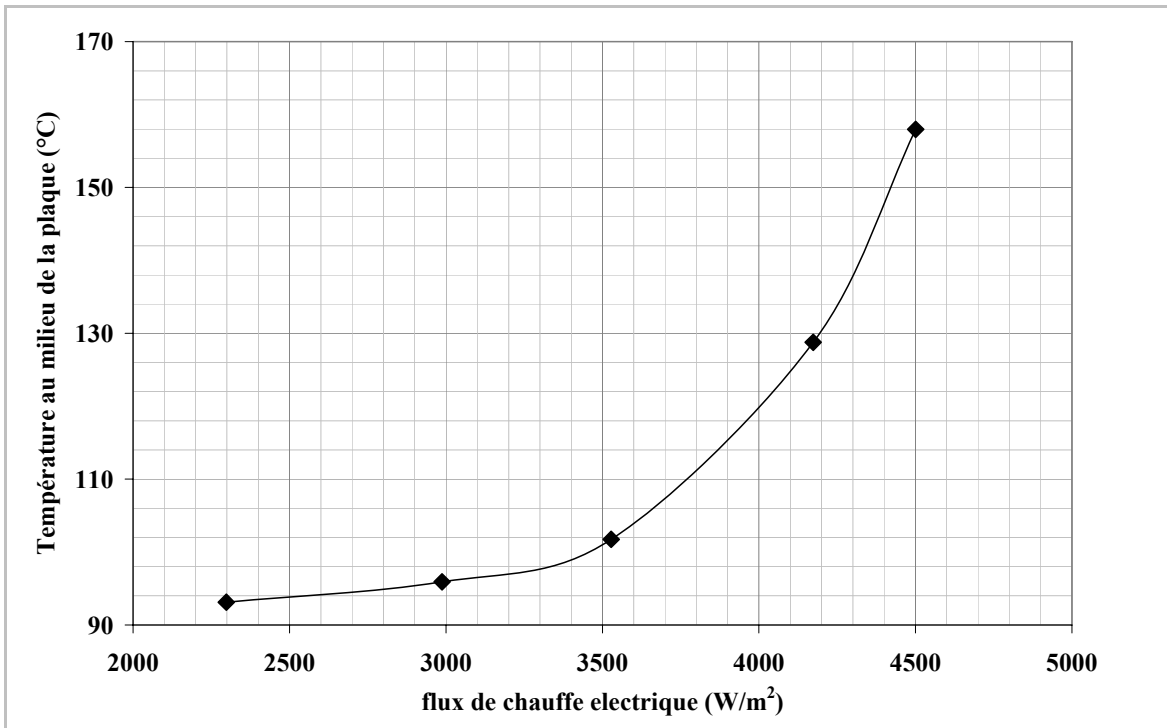


Figure IV. 2 : Evolution de la température au milieu de la plaque en fonction du flux de chauffe électrique ($A=4,70 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$, $x_A=0,46$, $\theta_{sat.}=87^\circ\text{C}$)

La figure IV.3 montre l'évolution du flux de chaleur transmis au film liquide en fonction de la différence de température entre la plaque et le liquide à sa température saturante. Ces différences de température sont obtenues à différents flux de chauffe électrique. Le flux transmis au liquide est bien entendu obtenu en soustrayant les pertes thermiques au flux électrique.

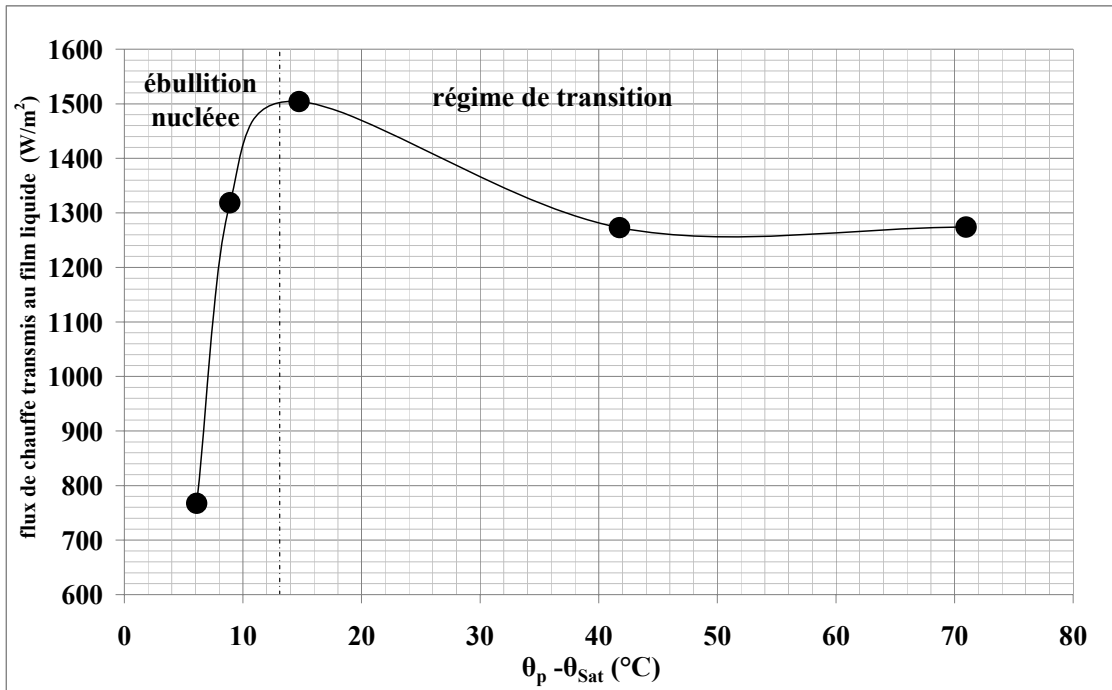


Figure IV. 3: Evolution du flux de chauffe transféré au film liquide en fonction de la différence entre la température de la plaque et la température de saturation ($A=4,70 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$, $x_A=0,46$, $\theta_{sat.}=87^\circ\text{C}$, flux de chaufes électriques: 2290 W.m^{-2} , 2964 W.m^{-2} , 3503 W.m^{-2} , 3907 W.m^{-2} , 4446 W.m^{-2})-plaque n°3

L'évolution de la courbe correspond au comportement typique identifié par Nukiyama (1934) et qui a mis en évidence les différents régimes d'ébullition.

Ces résultats montrent clairement qu'il existe deux régimes matérialisés par le maximum du flux de chauffe transféré au film liquide, avec comme transition, une valeur critique du flux de chauffe électrique (ici $\sim 3500 \text{ W.m}^{-2}$).

Aux faibles différences de température, le transfert de chaleur reste modeste : une bonne mouillabilité de la plaque est assurée par le film liquide et l'ébullition est nucléée. Une augmentation de la température à la paroi implique une forte hausse du flux de chaleur transmis au film tombant, ceci conduit à un régime de fonctionnement efficace.

Au-delà d'une différence de température de 11°C , une mince couche de vapeur se forme entre la paroi et le liquide. Ce phénomène plus connu par le nom de : *régime de transition* est responsable de la diminution importante du transfert de chaleur au sein du film tombant. En effet, la vapeur joue un rôle d'isolant thermique.

L'apparition du régime de transition aux flux de chauffe élevés provient du phénomène de caléfaction. Dans notre cas, la caléfaction est supposée se produire aux degrés de surchauffe élevés (40°C à 70°C au-dessus de la température de saturation du mélange binaire).

La caléfaction est l'apparition d'un film mince et continu de vapeur en contact avec la paroi chauffée, ce film pelliculaire de vapeur agit ainsi comme un isolant thermique, et dégrade ainsi le transfert thermique (Yoshioka *et al.*, 1975).

Enfin, un second phénomène se produit aux flux de chauffes plus élevés. Le film liquide est totalement vaporisé, il s'agit du « Dry-out ». Ce phénomène peut être écarté puisque dans tout les cas, un débit de liquide mesurable est récupéré en bas du micro-contacteur.

Les zones sèches peuvent se manifester comme une distribution spatiale sur une ou plusieurs parties de la surface chauffée où s'écoule le film liquide.

La figure IV.4 permet de montrer l'influence du débit d'alimentation A. Deux autres campagnes expérimentales effectuées à deux débits ont été rajoutées. La gamme de flux de chauffe électrique étudiée est comprise entre 2000 et 5000 W.m⁻².

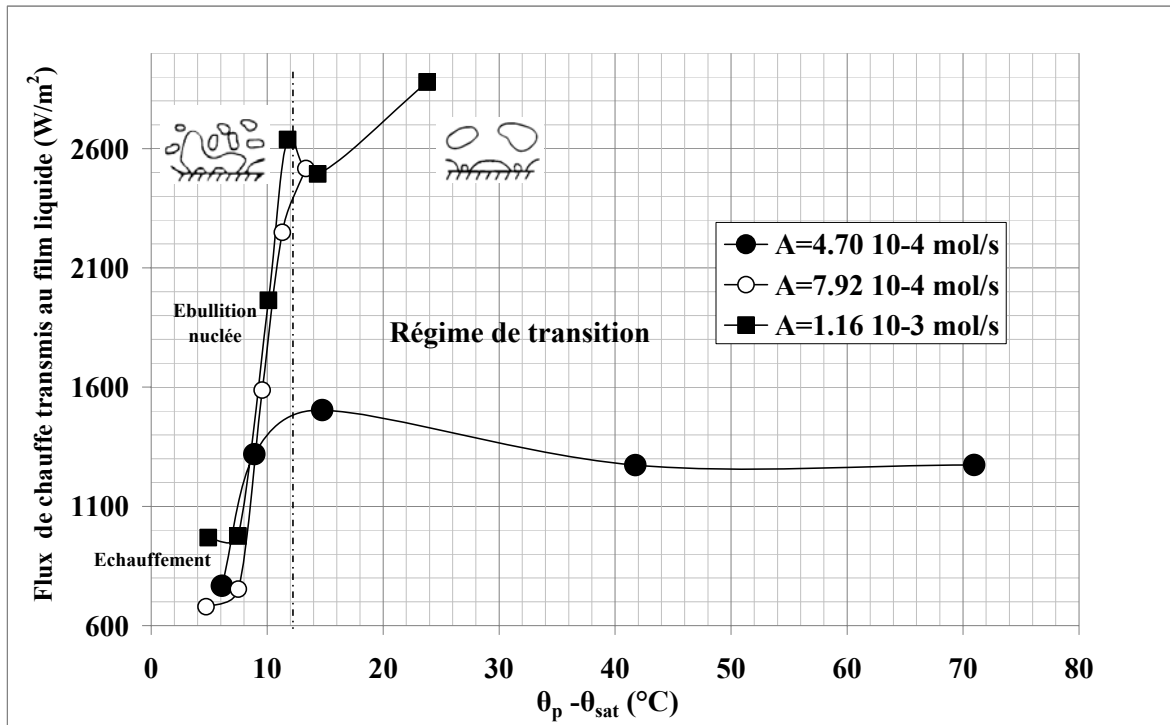


Figure IV. 4: Evolution du flux de chauffe transféré au film liquide en fonction de la différence entre la température de la plaque et la température de saturation (A=4,70 10⁻⁴ mol.s⁻¹, x_A=0,46, θ_{sat}. =87°C, flux de chauffes électriques: 2290 W.m⁻², 2964W.m⁻², 3503 W.m⁻², 3907 W.m⁻², 4446 W.m⁻²)-Plaque n°3

Quelque soit le débit, les courbes représentées suivent l'évolution typique de la courbe d'ébullition en vase de Nukiyama (1936).

On peut aussi observer qu'une augmentation du débit se traduit par des valeurs plus élevées du flux de chauffe transféré. Ces mêmes observations ont été soulignées dans le cas de l'évaporation de l'éthanol seul (Chapitre III).

A $\Delta\theta$ constant, l'augmentation du flux de chauffe transféré provient du remplissage plus important des micro-canaux. Les plaques sont alors mieux mouillées, ce qui favorise un bon transfert de la chaleur.

En effet, aux faibles débits (*e.g.* $A=4,7 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$), les canaux ne sont pas complètement remplis, la hauteur du film est très inférieure à la profondeur des canaux. Quand on augmente le débit (entre $A=7,92 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$ et $A=1,16 \cdot 10^{-3} \text{ mol.s}^{-1}$), cette hauteur augmente, et par conséquent la surface mouillée aussi, ce qui aboutit à une augmentation de la surface de transfert thermique efficace, d'où l'augmentation du flux de chauffe transféré avec le débit (Figure IV.4).

Enfin, quelque soit le débit d'alimentation, la transition entre le régime d'ébullition et le régime de transition (ébullition en film) est située à un degré de surchauffe d'environ $\sim 11^\circ\text{C}$.

La figure IV.5 montre également l'existence de ces deux régimes. Sur cette figure, la température de la paroi est tracée en fonction du temps, pour un débit d'alimentation égal à $A=4,70 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$ et pour deux flux de chauffe électriques ($q_{\text{elec}}=2290 \text{ W.m}^{-2}$ et $q_{\text{elec}}=3907 \text{ W.m}^{-2}$).

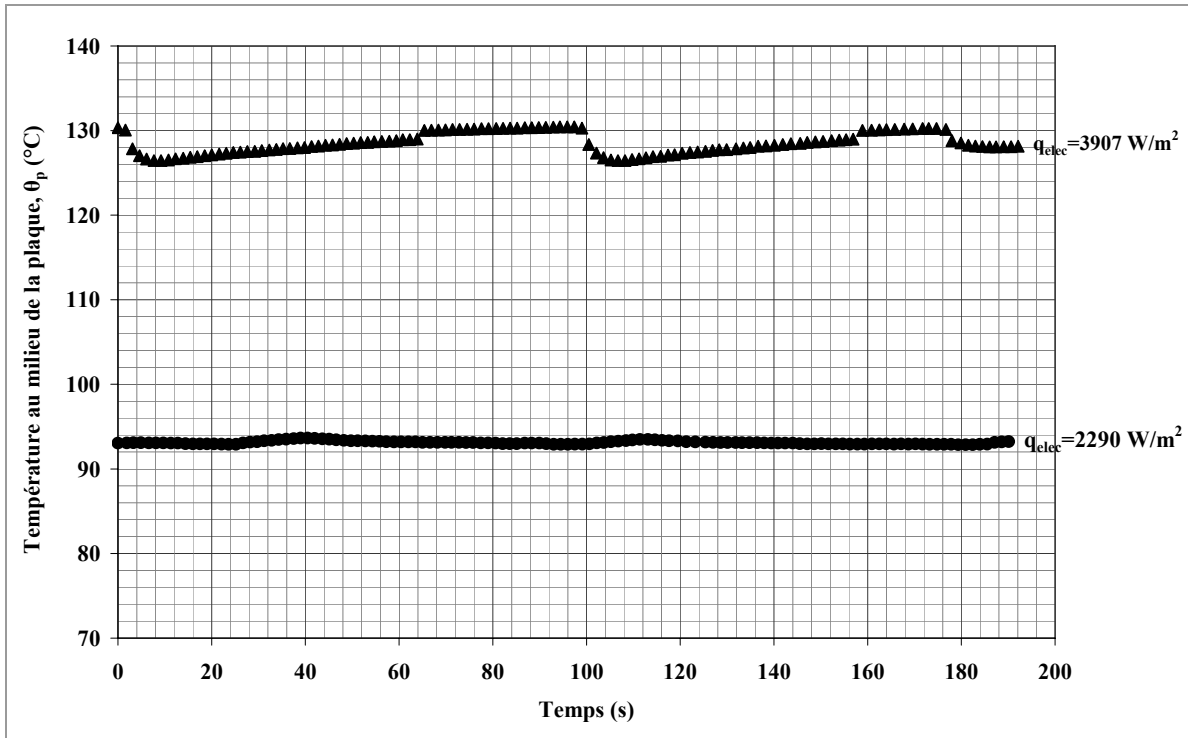


Figure IV. 5 : Température de la plaque (au centre) en fonction du temps
 $A=4,70 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$, $x_A=0,46$, $\theta_{sat.}=87^\circ\text{C}$, $q_{\text{élec}}=2290\text{W.m}^{-2}$ - 3907W.m^{-2} - Plaque n°3

À $q_{\text{élec}}=2290\text{W.m}^{-2}$, la température de la paroi est pratiquement constante (sans fluctuations majeures au cours du temps) mais légèrement supérieure à la température d'ébullition du mélange binaire. Ce comportement est associé à un état stable du régime d'ébullition et/ou d'échauffement du film tombant.

À $q_{\text{élec}}=3907\text{W.m}^{-2}$, des variations de températures peuvent être observées, celles-ci sont caractérisées par des fluctuations périodiques de la température de la plaque. Les valeurs de températures sont également beaucoup plus élevées que dans le cas précédent. A ce flux de chauffe, le niveau élevé de la température risque de générer une diminution de l'efficacité de transfert de chaleur entre celle-ci (paroi) et le film liquide car il s'agit du régime de transition (cf. Figure IV.4)

Les interprétations classiques faites le plus souvent sur les instabilités en ébullition nucléée ne peuvent pas être systématiquement transposée à la situation actuelle. En effet, notre cas d'étude est particulier en sens qu'il s'agit de transferts couplés de chaleur et de matière dans le cas de

l'étude d'un mélange binaire où les technologies des micro-canaux et des films tombants sont mises à contribution.

Les résultats expérimentaux qui seront présentés ci-après, aideront à clarifier les précédentes interprétations, mais aussi à mettre en évidence les performances et les limites du micro-contacteur à film tombant.

3.2 Evaporation et potentiel de séparation

Afin d'évaluer les performances et les limites du micro-contacteur à film tombant, il a été jugé utile de représenter pour un débit d'alimentation, l'évolution de plusieurs paramètres en fonction du flux de chauffe transmis au film liquide. Parmi ces paramètres, sont représentés d'une part : les valeurs en variables réduites du titre en soutirat (x_S/x_A) et du débit de soutirat (S/A), et d'autre part l'efficacité d'épuisement du film liquide définie par l'équation IV-2. Ces évolutions se trouvent sur la figure IV.6.

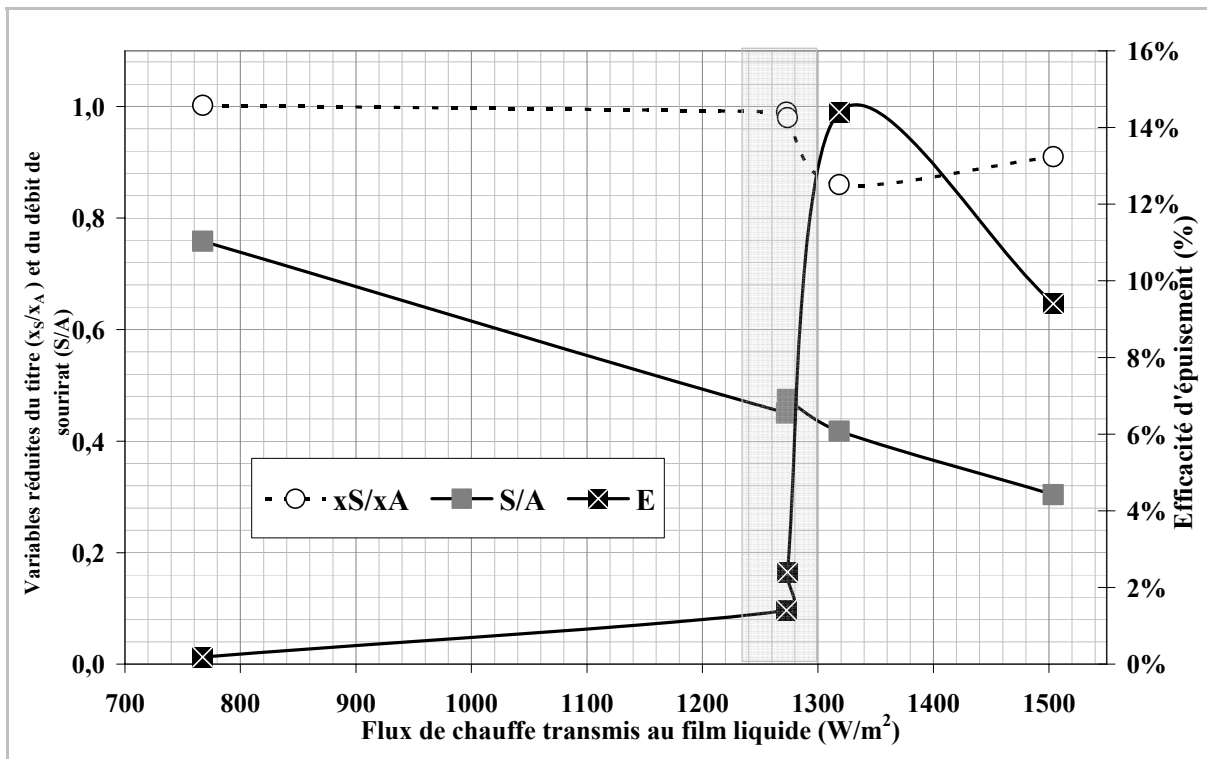


Figure IV. 6: Variables réduites en titre du soutirat (x_S/x_A) et en débit de soutirat (S/A) et l'efficacité d'épuisement (E) en fonction du flux de chauffe transmis au film tombant. $A=4,70 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$, $x_A=0,46$, $\theta_{sat.}=87^\circ\text{C}$; flux de chauffes électriques: 2290 W.m^{-2} , 2964 W.m^{-2} , 3503 W.m^{-2} , 3907 W.m^{-2} , 4446 W.m^{-2}) - plaque n°3

Le débit de soutirat (S/A) diminue de façon linéaire avec l'augmentation du flux de chaleur transmis au liquide. Cette évolution est attendue, car elle signifie que le flux de chaleur transmis au film liquide est proportionnel au produit du débit de vapeur sortant du micro-contacteur par l'enthalpie spécifique de la vapeur. La pente constante montre que l'enthalpie spécifique de la vapeur reste à peu près constante, à savoir que le titre de la vapeur ne varie que légèrement en fonction du flux de chaleur transmis au liquide. Ceci est également confirmé par l'évolution du titre réduit en soutirat (x_S/x_A). Les données expérimentales les plus élevées en débit évaporé ne correspondent pas forcément à des flux de chauffe électriques élevés, car les pertes thermiques ne sont pas constantes. Le taux d'évaporation le plus élevé est obtenu dans des conditions de faible ébullition à 1200 W.m^{-2} , ce qui correspond à un flux de chauffe électrique de 3503 W.m^{-2} et une différence température $\theta_p - \theta_s$ de 11°C environ. A remarquer que les taux d'évaporation les plus faibles sont obtenus aux flux de chauffés électriques élevés.

Pour expliquer les performances du microcontacteur en terme de séparation, il est commode d'utiliser les courbes de bulles et de rosée (Figure IV.7).

Les valeurs des titres molaires de vapeur et du liquide en sortie du micro-contacteur ont été placées ainsi que celle de l'alimentation, $x_A=0,46$.

A faible puissance de chauffe, la température de la plaque est relativement faible mais avoisine les valeurs théoriques de la courbe de bulle. La composition du liquide au soutirat est égale à celle du mélange d'alimentation ($x_S/x_A=1$, Figure IV.7) et le titre de la phase vapeur correspondant, donné par l'intersection de la ligne horizontale avec la courbe de rosée légèrement plus élevée est égale à $x_D/x_A=1,41$.

Aux flux de chauffés élevés, la température augmente jusqu'à être égale à la température limite donnée par la courbe de rosée (point B). Le titre molaire de la vapeur est alors égal à celui du mélange de départ : $x_D/x_A = 0,46/0,46 = 1$ et la composition au soutirat correspond à $x_S/x_A = 0,28/0,46 = 0,6$.

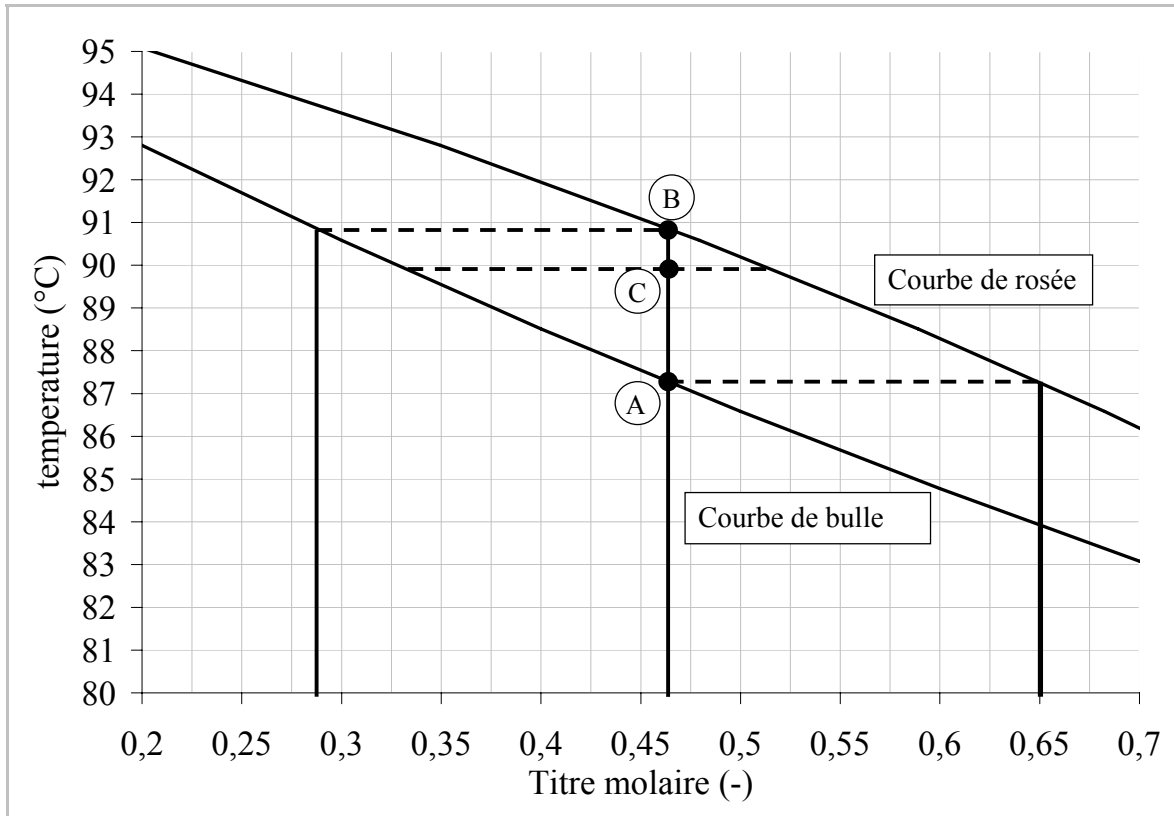


Figure IV. 7: Diagramme T-xy du mélange binaire éthanol/n-Propanol à P=101,3kPa- Agrandissement autour de la composition d'entrée $x_A = 0,46$

Lorsque la température du film tombant est progressivement augmentée, partant de la température d'ébullition au point de rosée en passant par le point C (mélange liquide/vapeur), les titres molaires de distillat et de soutirat balayent (pour le mélange binaire étudié) l'ensemble du domaine donné par le diagramme température-composition : T-x, y.

Pour soutenir les interprétations précédentes, les évolutions en variables réduites des titres molaires en distillat et en soutirat ont été représentées en fonction de la différence de température $\theta_p - \theta_s$ (Figure IV.8) pour un débit d'alimentation de $4,70 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$.

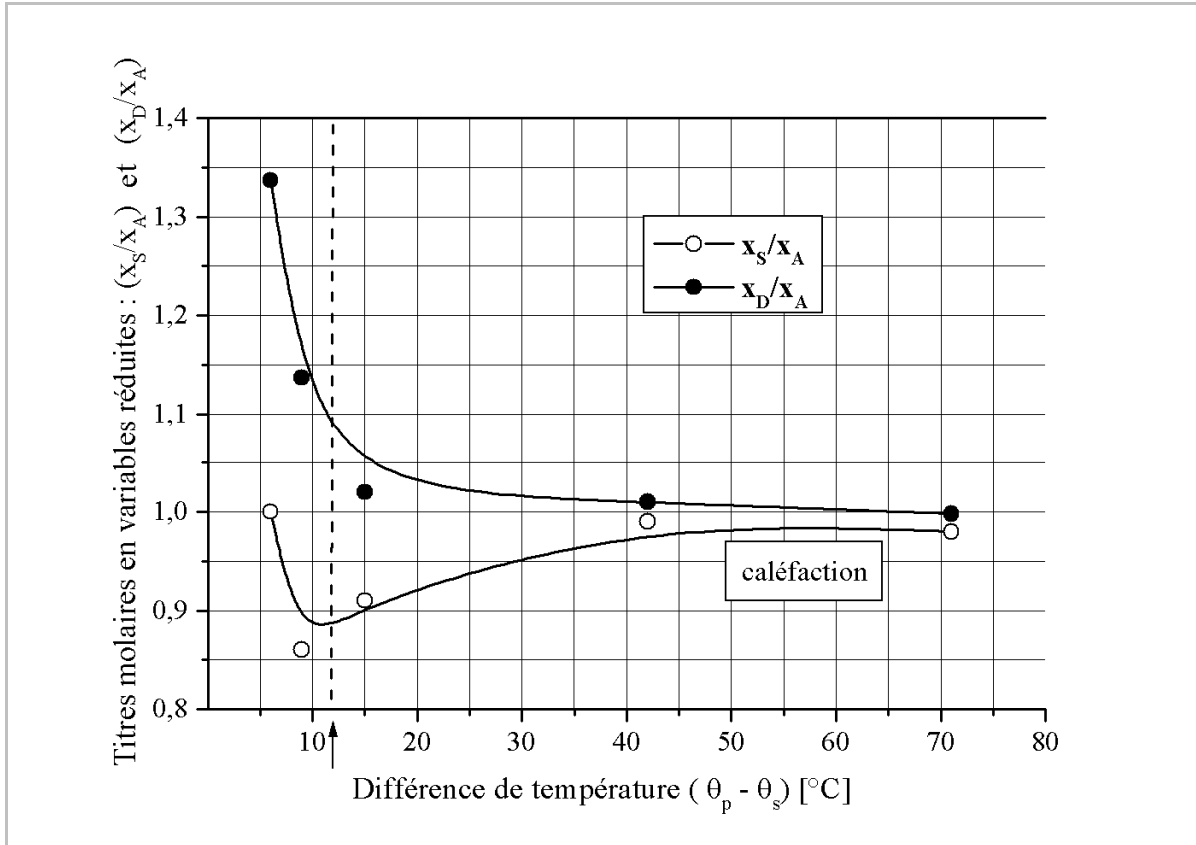


Figure IV. 8: Evolution en variables réduites des titres molaires en distillat et en soutirat en fonction de la différence de température $\theta_p - \theta_s$ – $A=4,70 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$, $x_A=0,46$, $\theta_{sat.}=87^\circ\text{C}$; flux de chauffe électriques: 2290 W.m^{-2} , $2964, \text{ W.m}^{-2}$, 3503 W.m^{-2} , 3907 W.m^{-2} , 4446 W.m^{-2})

Avec l'augmentation du degré de surchauffe $\theta_p - \theta_s$, on observe une diminution progressive du titre molaire de distillat en valeur réduite x_D/x_A de 1,34 (la valeur théorique maximale étant $x_D/x_A = 1,41$) à 1. Si l'objectif est la pureté du distillat, à savoir le plus riche en composé le plus volatil, cela signifie qu'il faut obtenir un rapport x_D/x_A le plus important possible. C'est le cas pour les faibles différences de température. En effet pour $\theta_p - \theta_s$ proche de 5°C , x_D/x_A atteint 1,34.

Cela signifie qu'il n'est pas nécessaire de générer une grande variation de température pour obtenir une vapeur riche en produit le plus volatil. Bien au contraire, la figure IV.8 montre qu'aux fortes variations $\theta_p - \theta_s$, x_D est peu différent de x_A . Cela signifie que la quasi-totalité de l'alimentation a été évaporée. Un régime de fonctionnement qui n'a pas d'intérêt pour un objectif de séparation.

Par contre, le titre molaire du soutirat en valeur réduite x_S/x_A , diminue dans un premier temps puis augmente pour tendre vers la valeur de 1.

Au dessus de $\theta_p - \theta_s = 10^\circ C$, le titre du soutirat est inférieur à celui de l'alimentation. En effet x_S/x_A est inférieur à un. Cela signifie que le film tombant s'est enrichi en produit le moins volatil. Une séparation partielle a donc eu lieu. Il s'agit d'un bon régime de fonctionnement.

Par contre, au-delà de $\theta_p - \theta_s = 30^\circ C$, le régime thermique est chaotique (zones sèches, caléfaction) à un point tel que la composition du film liquide ne change pas entre l'entrée et le soutirat.

Une inconnue subsiste : comment se fait-il qu'à ces températures du liquide, on se retrouve au soutirat avec un titre qui est plus proche de celui de l'alimentation ? Cela peut s'expliquer par une observation d'une sortie violente du liquide au soutirat voire sous forme pulvérisée. Ces observations sont également rapportées par Yoshioka *et al.* (1975) parlant de caléfaction et d'effet Leidenfrost. Ceci explique bien le fait qu'aux flux de chauffe élevés, le liquide et la vapeur sortent du micro-contacteur sans aucune séparation des constituants du mélange binaire.

Afin de quantifier l'influence du débit d'alimentation sur la séparation, les mêmes expériences ont été effectuées à un débit plus important : $7,4 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$. La figure IV.9 montre qu'une augmentation du débit d'alimentation de $4,70 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$ à $7,40 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$ réduit de manière drastique le degré de surchauffe à la paroi. Cet effet est sans doute dû au fait qu'à un débit plus élevé, un meilleur mouillage de la plaque est assuré grâce à un taux de remplissage plus élevé dans les micro-canaux. Toute la surface de transfert offerte est occupée. La séparation semble alors être plus intéressante à réaliser à un débit élevé, car celui-ci assurant une bonne mouillabilité de la surface de transfert thermique.

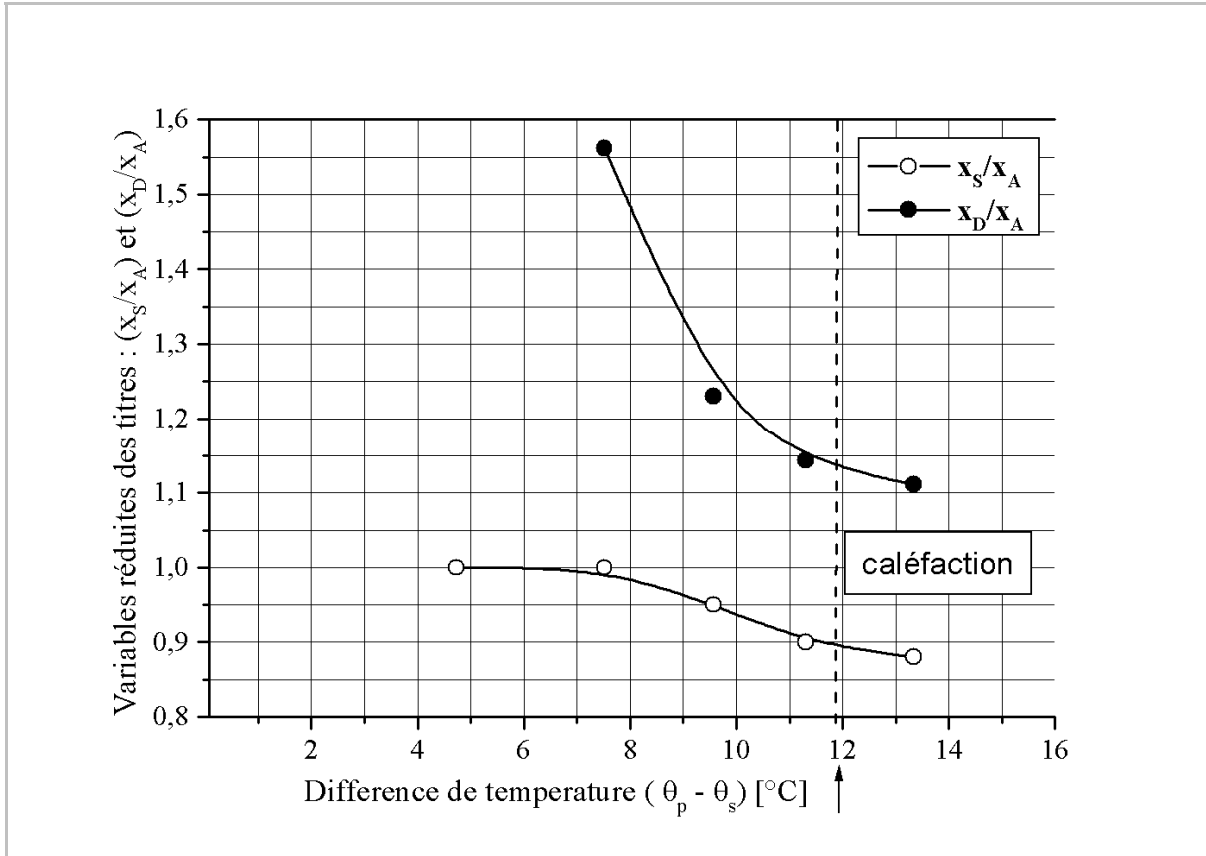


Figure IV. 9: Evolution en variables réduites des titres molaires en distillat et en soutirat en fonction de la différence de température $\theta_p - \theta_s - A = 7,4 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$, $x_A = 0,46$, $\theta_{sat.} = 87^\circ\text{C}$, flux de chauffes électriques: 2323 W.m^{-2} , 2960 W.m^{-2} , 3465 W.m^{-2} , 3901 W.m^{-2} , 4485 W.m^{-2}

En effet, quelque soit la valeur du degré de surchauffe ($\theta_p - \theta_s$), les valeurs du titre de distillat sont bien au-dessus du titre d'alimentation ($x_D/x_A > 1$). Ceci signifie que dans l'intervalle de variation du degré de surchauffe, la séparation des constituants du mélange est efficace.

De la même manière, le titre de soutirat décroît avec le degré de surchauffe. Le film s'appauvrit progressivement en composé le plus volatil (éthanol).

En conclusion, la séparation est plus efficace aux faibles degrés de surchauffe car l'écart entre les titres de distillat et de soutirat y est plus grand. Aux valeurs élevées du degré de surchauffe, le transfert thermique se dégrade du fait de l'apparition de zones sèches à la paroi et d'un éventuel film vapeur isolant. La séparation devient alors de moins en moins efficace.

3.3 Influence du débit d'alimentation

Afin de mieux élucider l'influence du débit sur la qualité de séparation des constituants du mélange, des expériences ont été effectuées avec des flux de chauffe électrique constants et avec des débits d'alimentation variant entre $3 \text{ et } 9 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$. La figure IV.10 montre l'évolution de la chaleur transférée au film liquide en fonction du débit d'alimentation. Cette quantité de chaleur Q est constituée de la chaleur sensible et de la chaleur latente.

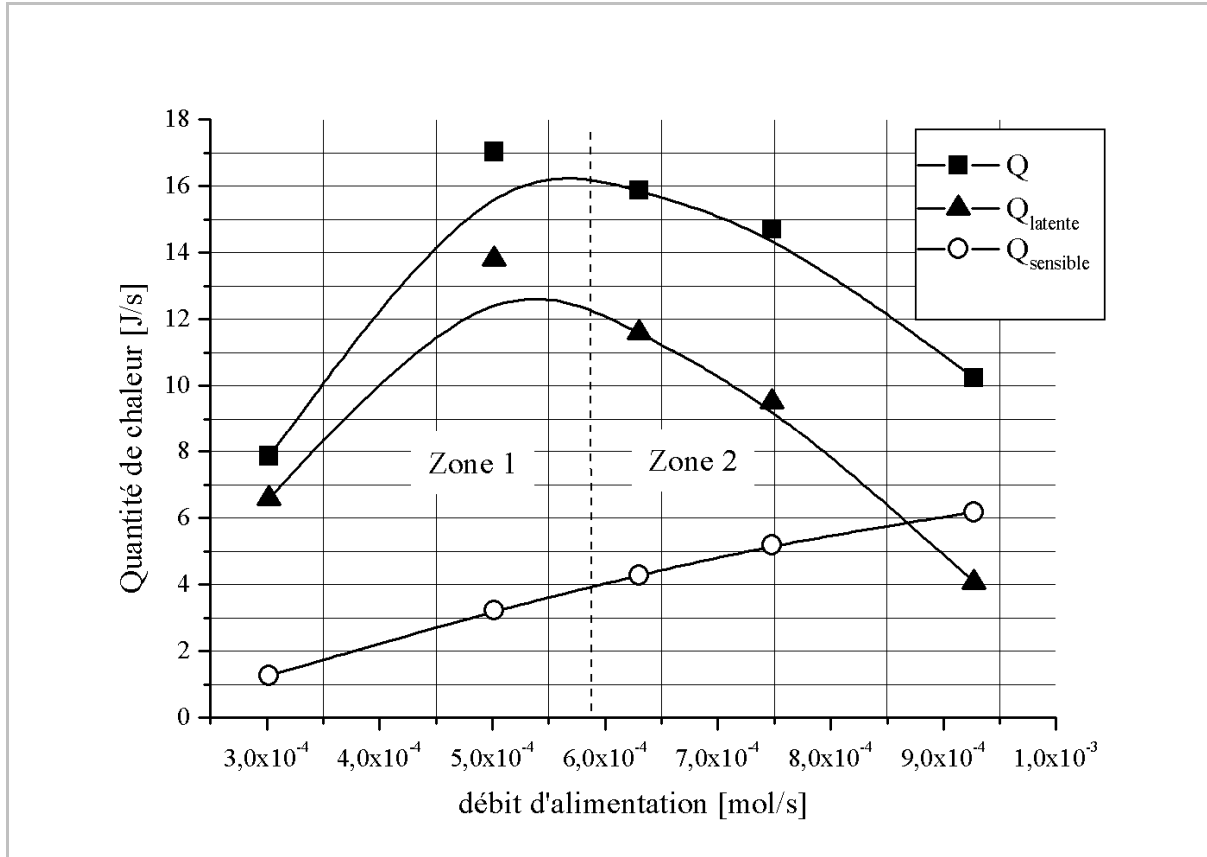


Figure IV. 10: Quantité de chaleur transmis au film tombant(Q), chaleur sensible (Q_{sensible}) et chaleur latente de vaporisation (Q_{latente}) en fonction du débit d'alimentation-

$$q_{\text{elec}}=2986\text{W.m}^{-2}, x_F=0,46, \theta_{\text{sat.}}=87^\circ\text{C}$$

En effet puisque le mélange binaire entre sous-refroidi, une chaleur sensible est nécessaire pour élever sa température jusqu'à son point d'ébullition. Cette chaleur sensible (cf. Figure IV.10, points blancs) croît avec l'augmentation du débit de liquide.

La chaleur latente (cf. Figure IV.10, triangles noirs) est ensuite utile à son évaporation partielle. Celle-ci est proportionnelle au débit de distillat évaporé.

La figure IV.10 permet de distinguer deux régimes de fonctionnement :

Aux faibles débits (zone 1), on observe une augmentation de la chaleur nécessaire à la vaporisation. Ainsi le débit de distillat augmente puisqu'il est proportionnel à la chaleur latente.

Aux débits plus élevés, c'est le contraire : le débit de distillat diminue progressivement en fonction du débit d'alimentation (zone 2). Il existe une transition entre ces deux zones. Celle-ci se situe autour d'un débit d'alimentation de $5 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$. A première vue, ce comportement montre l'existence d'un régime optimal pour la séparation. Cette affirmation est corroborée par l'évolution de l'efficacité d'épuisement en fonction du débit d'alimentation qui trouve également son optimum à $5 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$ (Figure IV.11).

Pour comprendre ces évolutions, il nous a semblé intéressant de tracer le flux thermique reçu par le liquide en fonction de la différence de température $\theta_p - \theta_s$ (Figure IV.12) ainsi que l'évolution de θ_p au cours du temps (Figure IV.13).

A très faible débit d'alimentation ($3 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$), la figure IV.13 montre que la température de la plaque est relativement élevée. Elle avoisine les 116°C , soit 29°C au-dessus de la température de saturation du mélange binaire. De plus, des fluctuations périodiques sont observées, ces variations intermittentes de la température sont attribuées à l'existence de zones sèches. Il en résulte (Figure IV.12) un faible flux de chauffe transféré au film liquide soit 650 W.m^{-2} . Cette faible quantité de chaleur transmise au film liquide est provoquée par le phénomène de caléfaction (régime de transition) où une forte présence de vapeur sur la paroi empêche le mouillage correct de la paroi par le film liquide, d'où une dégradation du transfert de chaleur.

Pour un débit élevé, par exemple à $A=5 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$, la température de la plaque descend à 98°C (Figure IV.13), soit 11°C au-dessus de la température d'ébullition du mélange binaire. Il en résulte un flux de chauffe transféré maximal de 1420 W.m^{-2} (Figure IV.12).

Pour les débits plus élevés ($6,3 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$, $7,5 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$ et $9,3 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$), la température de la plaque se stabilise autour de 95°C . Ceci correspond respectivement à des degrés de surchauffe ($\theta_p - \theta_s$) de $8,3^\circ\text{C}$, $7,9^\circ\text{C}$ et $7,6^\circ\text{C}$.

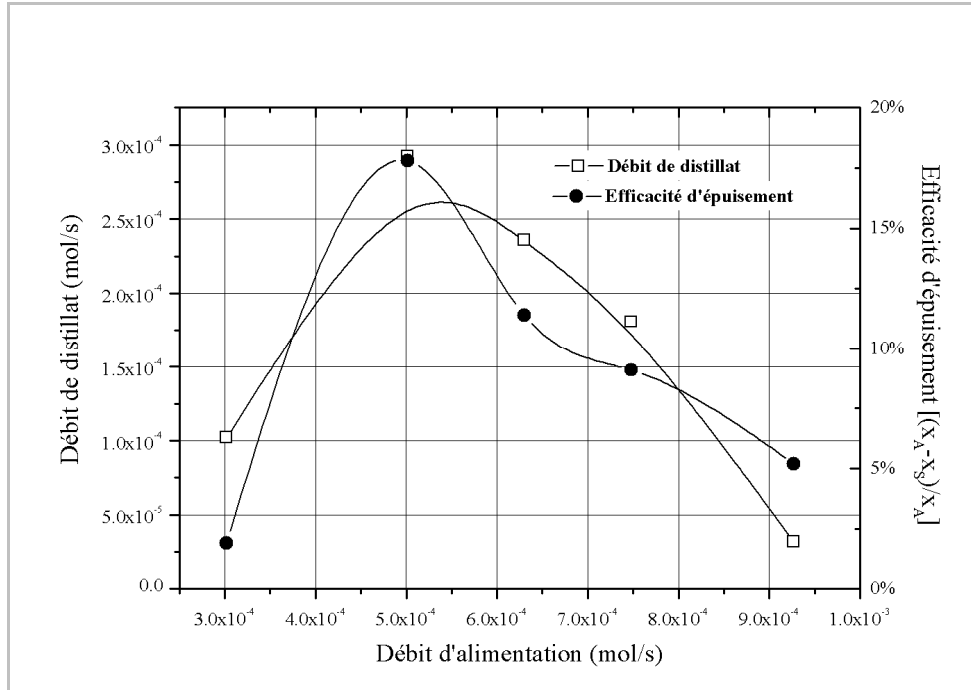


Figure IV. 11: Evolutions du débit de distillat (D) et de l'efficacité d'épuisement (E) en fonction du débit d'alimentation- $q_{elec}=2986W.m^{-2}$, $x_A=0,46$, $\theta_{sat.}=87^{\circ}C$

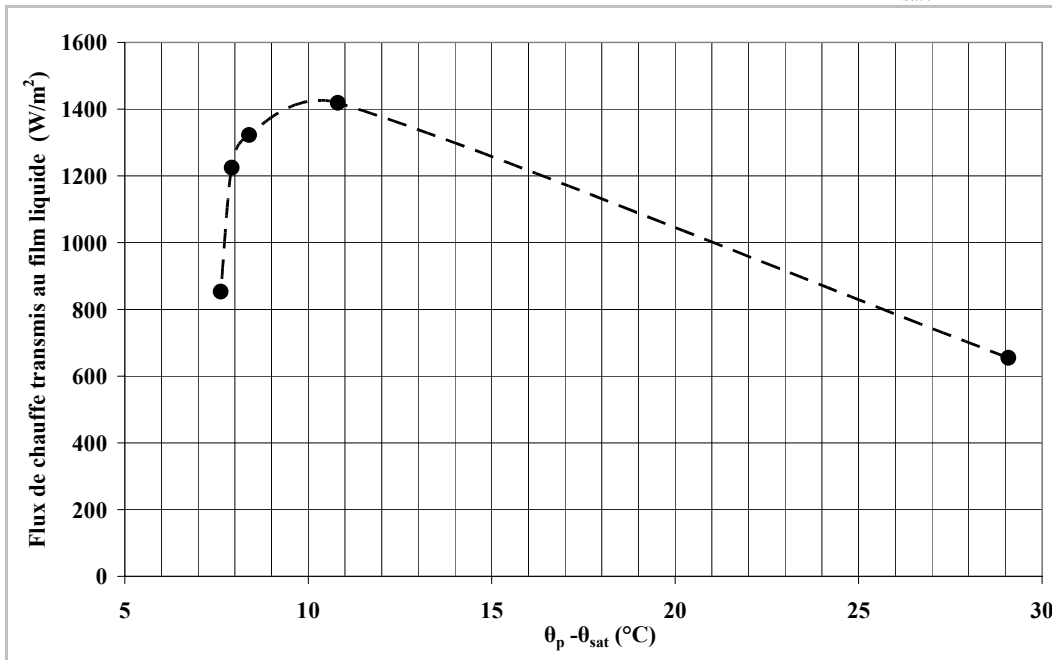


Figure IV. 12: Flux de chauffe transféré au film liquide en fonction de la différence entre la température de la plaque et la température de saturation ($\theta_p - \theta_s$) à différents débits d'alimentation- $q_{elec}=2986W.m^{-2}$, $x_A=0,46$, $\theta_{sat.}=87^{\circ}C$

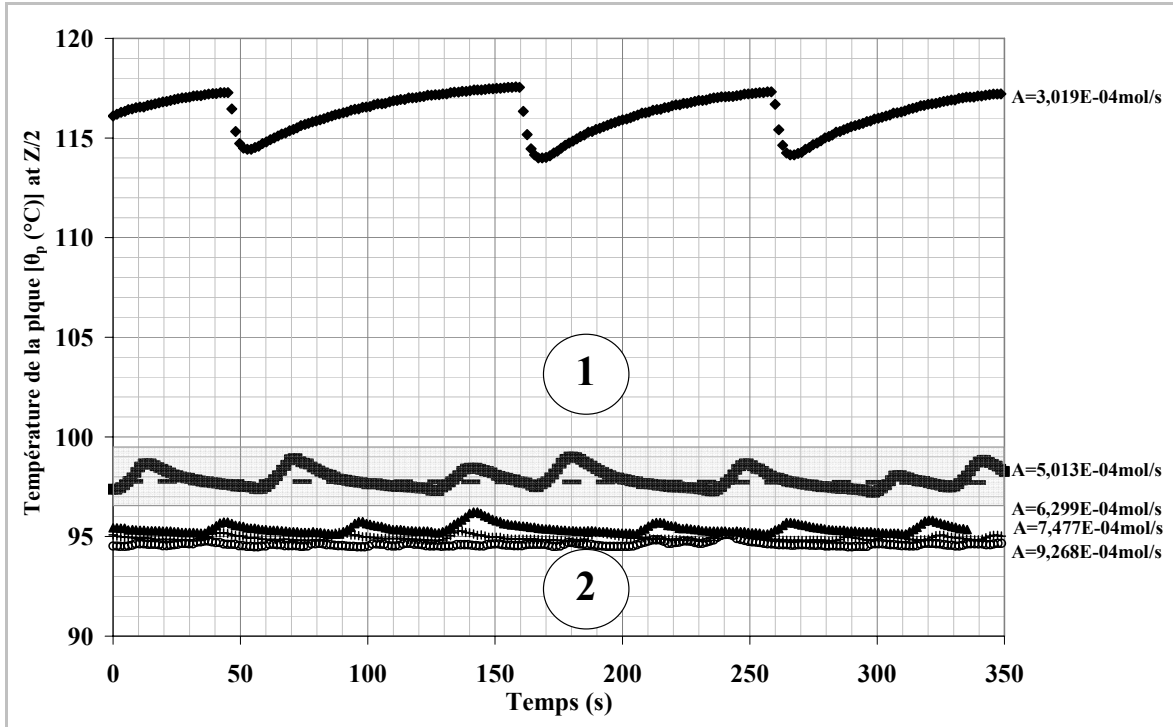


Figure IV. 13: Température de la plaque (au centre) en fonction du temps – $q_{\text{élec}}=2986\text{W.m}^{-2}$, $x_A=0,46$, $\theta_{\text{sat.}}=87^\circ\text{C}$

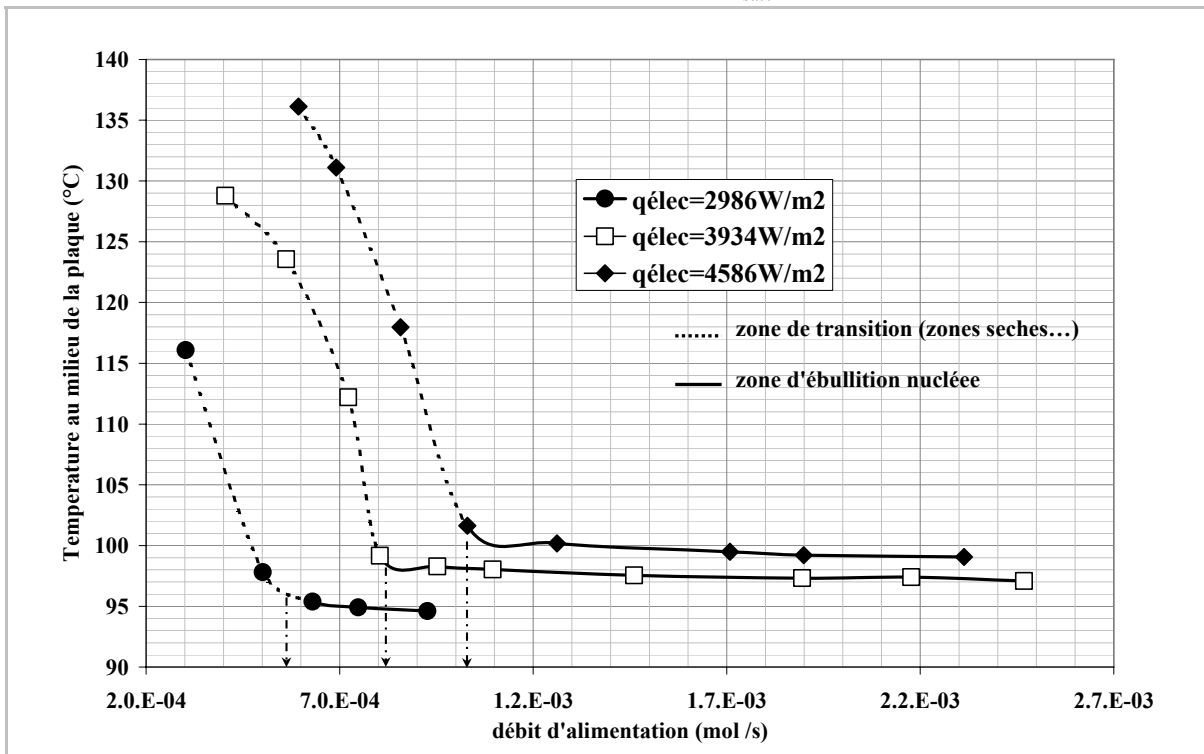


Figure IV. 14: Evolution de la température de la plaque (au milieu de la plaque) en fonction du débit d'alimentation, pour différents débits flux de chauffe électriques, $x_A=0,46$, $\theta_{\text{sat.}}=87^\circ\text{C}$

La figure IV.14 montre l'évolution de la température au centre de la plaque en fonction du débit d'alimentation pour trois flux de chauffe électrique ($q_{\text{élec}}=2986\text{W.m}^{-2}$, $q_{\text{élec}}=3934\text{W.m}^{-2}$ et $q_{\text{élec}}=4586\text{W.m}^{-2}$).

Pour chaque flux de chauffe électrique, la température de la plaque décroît en fonction du débit d'alimentation. Cette évolution suit une loi de type exponentielle décroissante. La transition entre l'ébullition nucléée (partie en traits continus sur chaque courbe) et le régime dit de transition (tirets) est matérialisée par le changement de pente. Aussi, avec l'augmentation du flux de chauffe, la limite entre la zone d'ébullition et la zone de transition est repoussée vers des valeurs plus élevées du débit d'alimentation. Au-delà de la valeur frontière du débit d'alimentation (valeur indiquée sur la figure IV.14 par les petites flèches), la température de la plaque atteint une valeur stationnaire.

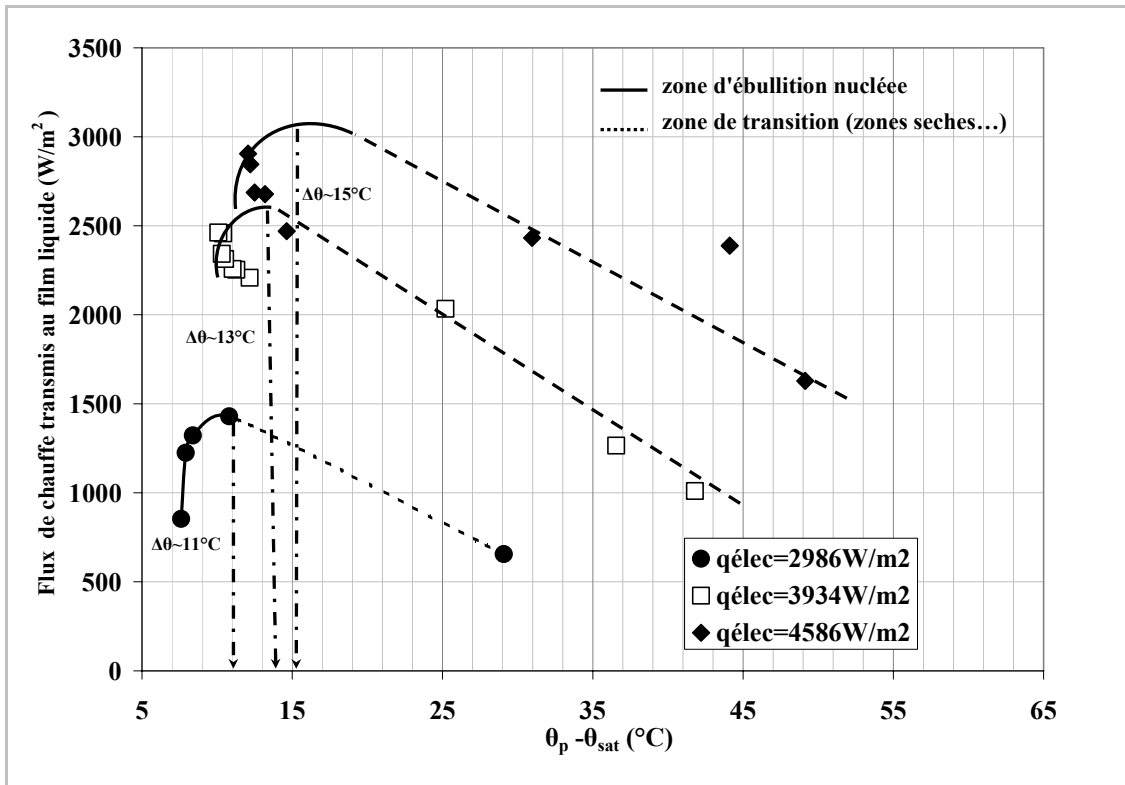


Figure IV. 15: Evolution du flux de chauffe transféré au film liquide en fonction de la différence entre la température de la plaque et la température de saturation ($\theta_p - \theta_s$) à différents débits flux de chauffes électriques ($q_{\text{élec}}=2986\text{W.m}^{-2}$, $q_{\text{élec}}=3934\text{W.m}^{-2}$ et $q_{\text{élec}}=4586\text{W.m}^{-2}$), $x_A=0.46$, $\theta_{sat. s}=87^\circ\text{C}$

La figure IV.15 décrit l'évolution du flux de chaleur transféré au film tombant en fonction de la différence de température $\theta_p - \theta_s$ à différents flux de chauffe électriques.

Chaque courbe a été établie à différents débit d'alimentation et une puissance électrique maintenue constante. L'intervalle de variation des débits d'alimentation n'est pas le même selon la puissance de chauffe électrique. En effet, les puissances de chauffe élevées permettent de travailler à des gammes de débits plus étendues.

Aux flux étudiés, on reconnaît sur chaque courbe, l'évolution caractéristique de la courbe d'ébullition en vase de Nukiyama.

Avec l'augmentation du flux de chauffe électrique, la transition entre régime d'ébullition nucléée et le régime instable de transition est repoussée vers des degrés de surchauffe $\theta_p - \theta_s$ élevés. Il semblerait que cette transition entre régimes soit peu sensible au flux de chauffe imposé car, elle se situe à des différences de températures relativement proches : de 11°C, 13°C et 15°C (respectivement pour les flux de chauffe de $q_{\text{elec}}=2986\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$, $q_{\text{elec}}=3934\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$ et $q_{\text{elec}}=4586\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$).

Ainsi, quelque soit le flux de chauffe électrique imposé, il est plus judicieux de travailler aux faibles degrés de surchauffe. Cette condition correspond aux débits modérés où les plaques sont convenablement mouillées et la surfaces d'échange thermique bien recouverte.

3.4 Performances du micro-contacteur en termes de puissance de séparation

Afin d'évaluer la performance du micro-contacteur, il est utile de faire la distinction entre le degré de pureté du mélange que l'on désire séparer et qui dépend uniquement des grandeurs intensives (titres molaires, efficacité d'épuisement), et les taux de production de distillat (D/A) et/ou de soutirat (S/A), liés uniquement qu'aux grandeurs extensives (débits). En toute rigueur, si nous souhaitons caractériser la performance du micro-contacteur avec un seul critère, il apparaît que celui-ci doit tenir compte du bilan matière, des titres et de l'énergie requise pour réaliser la séparation souhaitée.

La thermodynamique offre un moyen pratique d'arriver à cela puisqu'elle considère que les notions de débits, de titres et d'énergies nécessaires à la réalisation de la séparation comme des variables, une fois convoluées, permettent une meilleure caractérisation d'une séparation donnée.

Sorin *et al.* (2007) ont défini un critère de performance qu'ils ont nommé "puissance de séparation". Ce critère est dérivé des considérations de bilan exergétique et implique à la fois des grandeurs intensives (titres molaires) et extensives (débits). La puissance de séparation est une partie de l'exergie compositionnelle entre l'entrée et de sortie du procédé (équations IV- 3 et IV- 4). Selon Sorin *et al.* la puissance maximale de la séparation est atteinte lorsque la moitié de l'exergie dépensée est détruite dans le processus et l'autre moitié transformée en puissance de séparation.

$$P_{sép} = RT_0 \left[\sum_{out} F_{out} x_{out} \ln x_{out} - \sum_{in} F_{in} x_{in} \ln x_{in} \right] \quad \text{Equation IV- 3}$$

Cette expression devient dans notre cas:

$$P_{sép} = RT_0 [(Dx_D \ln x_D + Sx_S \ln x_S) - Ax_A \ln x_A] \quad \text{Equation IV- 4}$$

Avec T_0 , la température de l'environnement.

La figure IV.16 montre pour trois flux de chauffe électriques, l'évolution de la puissance de séparation en fonction du débit d'alimentation.

Pour chaque flux de chauffe, les courbes montrent une valeur maximale de la puissance de séparation. Ce comportement montre l'existence d'un couple (débit (A), $q_{élec}$) optimal pour la séparation.

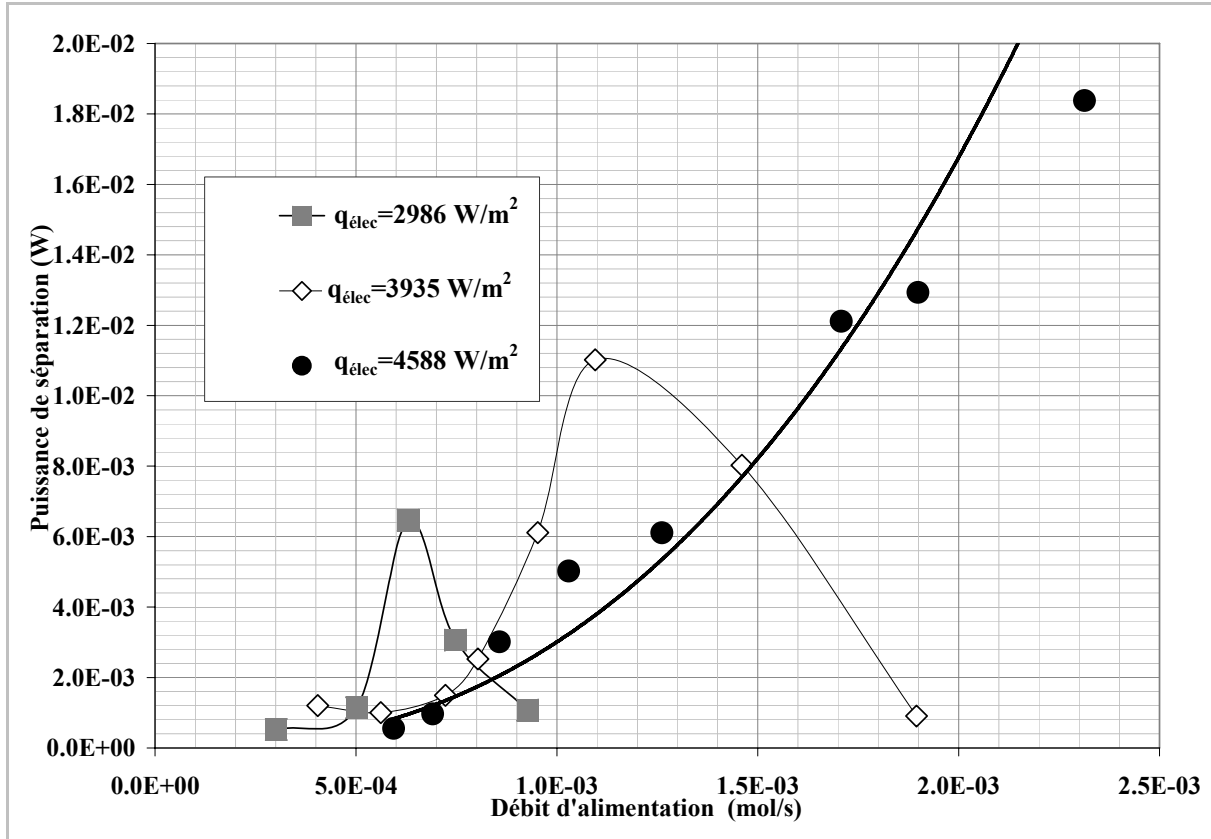


Figure IV. 16: Evolutions de la puissance de séparation (P_{sep}) en fonction du débit d'alimentation pour différents flux de chauffe électriques ($q_{\text{elec}}=2986 \text{ W.m}^{-2}$, $q_{\text{elec}}=2986 \text{ W.m}^{-2}$, $q_{\text{elec}}=2986 \text{ W.m}^{-2}$ - $x_A=0,46$, $\theta_{\text{sat.}}=87^\circ\text{C}$)

Comme discuté plus haut, aux faibles débits d'alimentation, des zones sèches apparaissent, la résistance au transfert augmente et de la chaleur est dégradée. La puissance de séparation est faible. Le régime d'ébullition a une influence sur l'évolution de la puissance de séparation. L'augmentation du débit d'alimentation diminue la formation des zones sèches. Ainsi, la puissance de séparation (P_{sep}) augmente progressivement avec le débit d'alimentation avant d'atteindre sa valeur maximale ; car au-delà, le débit de liquide est trop important par rapport à la puissance fournie. Le distillat peut atteindre une grande pureté mais son débit sera faible.

Comme le montre la figure IV.16, nous pouvons suggérer d'opérer dans une gamme de débit d'alimentation se trouvant autour du point « optimal » de fonctionnement. On peut supposer que dans ces conditions, le film tombant est bien reparti sur la surface de la plaque. La mouillabilité est bonne, ce qui améliore la transmission de la chaleur entre la plaque et le film de liquide binaire.

D'un point de vue thermodynamique, lorsque la puissance de séparation augmente, à puissance électrique constante cela signifie que la part de l'exergie détruite diminue. Ainsi, à l'optimum, l'exergie détruite est minimale ainsi que les irréversibilités.

Cette région correspondrait à un compromis thermodynamique entre la productivité (taux de distillat récupéré), la qualité de la séparation (pureté) et la quantité de chaleur transmise au film (efficacité thermodynamique).

Cela définit donc une limite, au-delà ou en deçà de laquelle, une augmentation et /ou une diminution du débit d'alimentation se traduira par une réduction significative des performances du micro-contacteur.

Conclusion

Au terme de cette étude, plusieurs conclusions peuvent être tirées. Tout d'abord, on remarque principalement deux régimes d'ébullition : l'ébullition nucléée et l'ébullition en film avec apparition de phénomènes de zones sèches et/ou de caléfaction.

Les expériences avec le mélange binaire éthanol/n-propanol ont permis de vérifier que ces régimes de transfert de chaleur sont sensibles aux transferts de matière au sein du film liquide.

Une étude paramétrique a été menée pour montrer les influences du débit d'alimentation et du flux de chauffe. Il en ressort que ces deux paramètres ont des valeurs particulières dites critiques montrant l'existence de limites effectives en termes de flux de chauffe et de débit.

Enfin, il existe une valeur maximale de la puissance de séparation, celle-ci est prise comme étant un bon compromis entre la qualité de la séparation, la quantité de distillat (vapeur produite) et la chaleur nécessaire pour la séparation des constituants du mélange binaire.

Les observations expérimentales soulignent le potentiel réel de ce dispositif à effectuer de la séparation, mais mettent néanmoins en évidence la complexité inhérente à ce procédé à savoir, l'apparition des zones sèches aux flux de chauffes élevés et/ou aux très faibles débits d'alimentation.

CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES

CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES

Conclusion générale

Cette thèse a eu pour objectifs : la conception d'un micro-contacteur à film tombant, sa caractérisation et l'étude de faisabilité de la distillation d'un mélange binaire.

Le travail a donc concerné le développement d'un nouveau procédé de séparation alliant à la fois les technologies des films tombants d'une part et des micro-canaux d'autre part. .

L'appareil conçu dans cette étude fonctionne suivant le principe du film tombant, ce dernier est maintenu stable grâce à la microstructuration des supports. Cette technique permet de mettre en contact un film liquide très mince avec une phase vapeur formée *in situ* dans la chambre vapeur.

Les différents éléments constituant le microcontacteur sont décrits et ses caractéristiques géométriques mises en avant, notamment les aires interfaciales de transferts thermiques et de matière.

L'aire interfaciale de transfert thermique est comprise entre $100 \text{ m}^2/\text{m}^3$ et $126 \text{ m}^2/\text{m}^3$, celle de transfert de matière se situe entre $60 \text{ m}^2/\text{m}^3$ et $95 \text{ m}^2/\text{m}^3$. Il est apparu à travers l'analyse de l'évolution de l'aire de transfert thermique, à profondeurs (d_C) égales, que l'aire interfaciale de transfert thermique diminue quand on augmente la largeur du canal, autrement dit plus le canal est plat (tend vers une plaque lisse) moins le transfert thermique serait efficace. Il existe donc un effet d'ailettes des microcanaux.

D'après le formalisme évaluant l'aire interfaciale de transfert de matière ($a_{V/L}$), cette dernière ne dépend pas de la profondeur des microcanaux. Toutefois, elle joue un rôle important dans la stabilisation du film tombant très mince.

D'abord, la démarche de caractérisation du micro-contacteur a consisté à l'utilisation d'un corps pur test (l'éthanol) afin d'étudier les aspects de transferts thermiques spécifique au système.

Ce travail nous a permis d'identifier les différents régimes d'ébullition dans le micro-contacteur. Les résultats expérimentaux d'ébullition de l'éthanol pur mettent en lumière principalement deux phénomènes. D'une part, les zones sèches semblent se manifester aux flux de chauffe élevés, ce qui a pour effet la dégradation du coefficient de transfert de chaleur, et d'autre part pour des flux

CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES

de chauffe modérés, l'ébullition nucléée est pleinement développée. À cette condition, on constate une amélioration des transferts thermiques.

Toutefois, il convient de noter que les valeurs des coefficients de transferts obtenus sont modestes. Ces valeurs peu communes à celles souvent observées dans la littérature peuvent avoir deux principales raisons : **le mode fonctionnement du micro-contacteur** et **la métrologie (degré de précision des mesures de dimensions et de températures de plaques)**

Fonctionnement du micro-contacteur :

- les temps de séjour du film tombant dans le micro-contacteur sont si faibles (<10s) que le temps de contact liquide /paroi peut être très faible. Le film liquide est alors très peu chauffé, impliquant une augmentation de la différence de température avec la paroi ($\Delta\theta$ augmente). De ce fait d'après le formalisme déterminant le coefficient d'échange, une forte augmentation de $\Delta\theta$ peut être à l'origine des valeurs modestes du coefficient de transfert de chaleur.
- la vapeur étant formée in-situ dans le micro-contacteur fait que la convection naturelle y est prédominante par rapport à la convection forcée (rappelons qu'aucune pompe n'est utilisée pour la phase vapeur).

Contraintes métrologiques

Le fait de travailler à petites échelles, il aurait été judicieux d'utiliser un appareillage plus précis pour la mesure des dimensions, à l'image de la microscopie électronique à balayage (bien que celui-ci ait été utilisé pour une observation qualitative de l'état de surface des plaques). Le MEB constitue un outil efficace pour l'exploitation des mesures avec la précision requise en milieu confiné. Rappelons aussi que cela est justifié par le simple fait que pour calculer le nombre de Reynolds, il est nécessaire de connaître les dimensions en profondeur et en largeur du microcanal. L'évaluation des dimensions au MEB rendrait donc plus précises les mesures faites en ébullition. D'autre part, concernant l'implantation des thermocouples placés contre les plaques, on est peu certain de l'emplacement exact où aboutit un thermocouple, si c'est dans un canal ouvert ou sur une ailette. Toutefois même si dans les deux cas l'épaisseur de la paroi n'est pas la même, la température mesurée variera que de très peu, et a donc peu d'incidences sur l'évaluation de la valeur locale du coefficient de transfert de chaleur.

CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES

On a évalué le potentiel du microcontacteur à séparer un mélange binaire constitué d'éthanol et de *n*-propanol. En fonction du débit d'alimentation et de la pureté en produit souhaitée, il est important de ne pas apporter trop de chaleur au risque de se retrouver dans des conditions d'apparition de zones non propices à une bonne séparation. De la même manière, l'apport insuffisant de chaleur détériore également les performances de séparation. Des calculs effectués à partir de la puissance de séparation corroborent ces résultats en définissant un optimum favorable à une meilleure séparation.

Perspectives

Bien que ce travail nous ait permis de caractériser le fonctionnement du micro-contacteur à film tombant et de déterminer les conditions expérimentales menant aux meilleures performances, il met également en lumière les limites du dispositif mais aussi les voies à explorer dans le futur.

Parmi celles-ci, une étude paramétrique de l'influence de la géométrie des plaques et de la modularité de l'épaisseur de la veine vapeur est à scruter. Ceci implique un travail expérimental encore considérable qui permettra de façon plus exhaustive de caractériser le transfert thermique, étape indispensable pour mieux appréhender l'étude de faisabilité de la distillation. L'étude de l'ensemble des plaques conçues et présentées au chapitre II est donc nécessaire pour montrer l'impact de la structuration des plaques sur l'ébullition en micro-canaux et aussi son influence sur les performances de la séparation.

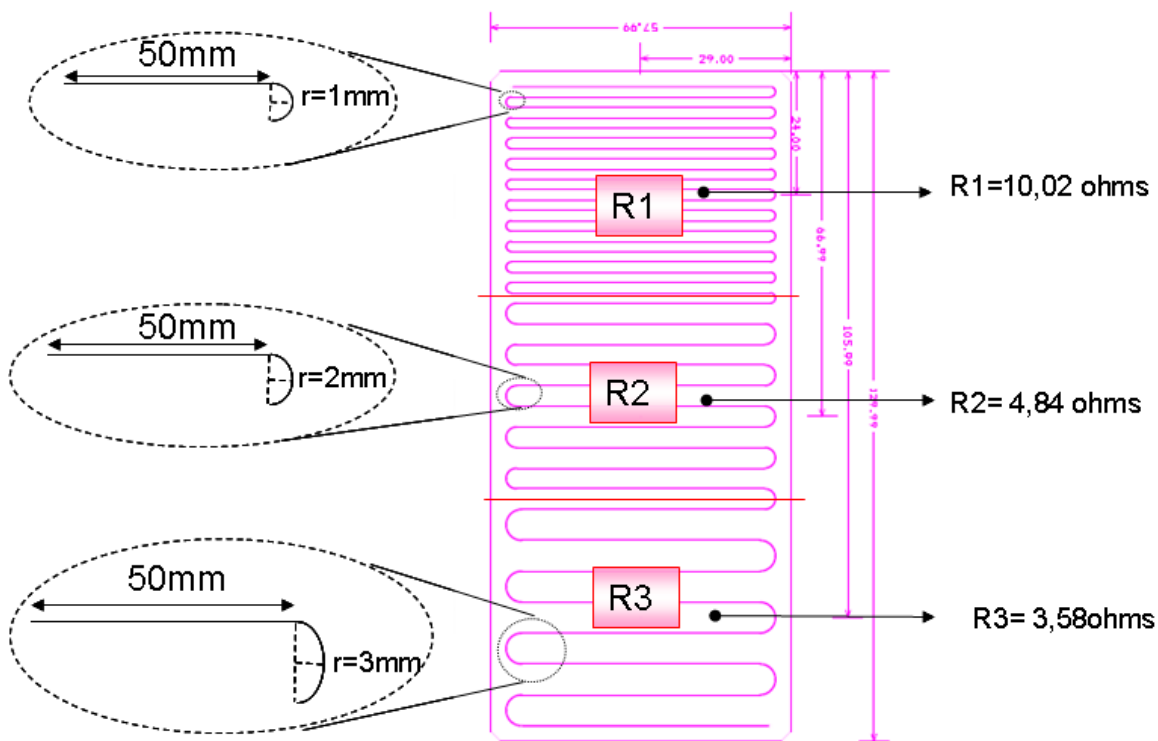
Il serait intéressant en appoint à la caractérisation thermique faite au chapitre III, d'utiliser la thermographie infrarouge directement sur le film tombant ou sur la paroi externe des parois, auquel cas cela permettrait de remonter, par des techniques inverses adaptées, à la distribution de température et à la densité de flux pariétales ou de terme source. Cette technique pourrait permettre de localiser et surtout de mieux comprendre les conditions de formations des zones sèches.

Bien que la matrice en téflon ainsi que la mousse de verre intégrée dans le dispositif permettent d'isoler thermiquement une grande partie du micro-contacteur, des déperditions thermiques existent. Le moyen le plus efficace afin de réduire au minimum ces pertes, serait de prévoir une

CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES

cage isolante dans laquelle le micro-contacteur serait confiné. Cette technique serait toutefois efficace pour l'isolation thermique du dispositif, mais rendrait néanmoins difficile les étapes de montage et de démontage du dispositif expérimental.

On peut également imaginer de discrétiser l'énergie à acheminer sur chaque étage de séparation de manière à obtenir des séparations encore plus efficaces. Cette répartition de la chaleur le long des étages est déjà connue sous le concept de diabatisation. Il s'agit donc de structurer la résistance chauffante de façon à pouvoir contrôler le flux de chauffe à acheminer (cf. Figure ci-dessous). Ceci peut être une solution permettant à chaque étage réel ou théorique, d'apporter l'énergie nécessaire pour faire la séparation souhaitée et de rationaliser la consommation énergétique.



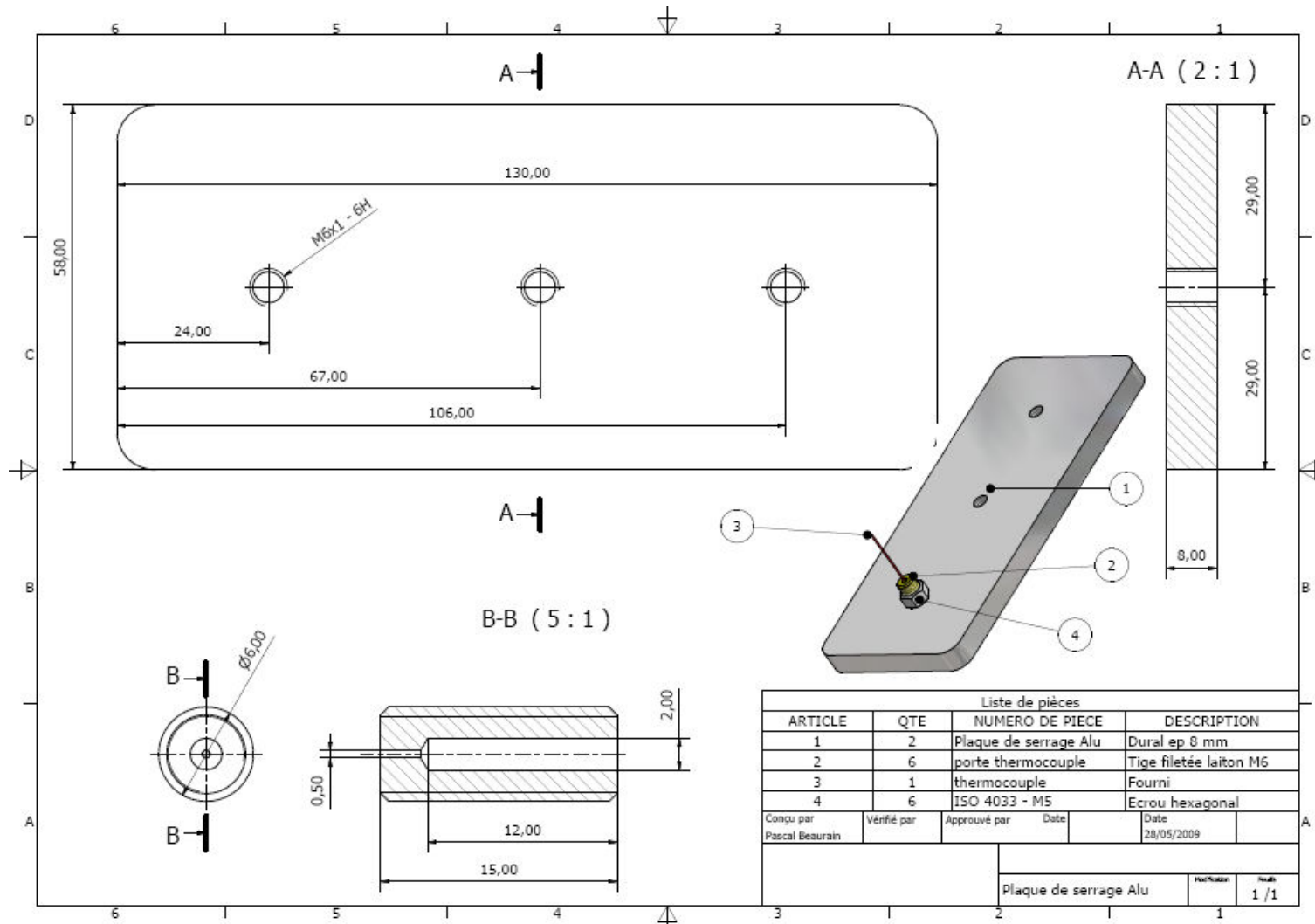
Gestion des gradients thermiques : Diabatisation par la structuration

Afin d'améliorer la qualité des mesures de température à la paroi, on a mis au point une autre technique permettant l'acheminement des thermocouples sur les plaques avec plus de précision.

CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES

Le thermocouple est porté par une vis sur laquelle il est maintenu solidaire. Celui-ci sera vissé dans un écrou dédié, le contact thermocouple-plaque étant assuré en faisant avancer le pas de vis jusqu'à la butée (signe du contact entre le thermocouple et la paroi externe de la plaque micro-rainurée). Le schéma ci-après en explique le fonctionnement. Faute de temps cet élément n'a pu être testé dans le cadre de cette étude.

CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES



Nouvelle technique de maintien des thermocouples de paroi

Notations

a	aire interfaciale de transfert
A	débit d'alimentation (mol s ⁻¹)
c _p	capacité calorifique (J mol ⁻¹ K ⁻¹)
d	diamètre (m)
d _{hyd.}	diamètre hydraulique (m)
D	débit de distillat (mol s ⁻¹)
E	efficacité d'épuisement (-)
Ex	exergie (J)
g	accélération de la pesanteur (m s ⁻²)
h	enthalpie molaire (J/mol)
h _L	coefficient de transfert de chaleur (W/m ² .°C)
I	intensité (A)
L _v	enthalpie de changement de phase liquide-vapeur (J kg ⁻¹)
\dot{m}	débit massique rapporté au section de passage du fluide (kg/s)
P	pression totale (Pa)
P _{sép}	puissance de séparation (exergie compositionnelle) (W)
q	densité de flux de chauffe (W m ⁻²)
Q	puissance de chauffe (J s ⁻¹)
R	constante molaire des gaz parfaits (J.K ⁻¹ .mol ⁻¹)
S	débit de soutirat (mol s ⁻¹)
T ₀	température de l'environnement (K)
U	tension électrique (V)
\dot{V}	débit volumique (m ³ /s)
u _{m,L}	vitesse moyenne du liquide dans un microcanal ($\langle u_L \rangle = A_{vol}/2n_C\delta_L w_C$) (m/s)
x	fraction molaire d'éthanol liquide (-)
y	fraction molaire de la phase vapeur (-)
z	position axiale (m)

Nombres adimensionnels

Re _L	Nombre de Reynolds liquide	$Re_L = \frac{\rho_L u_{m,L} D_h}{\mu_L}$
-----------------	----------------------------	---

Nu_L	Nombre de Nusselt liquide	$Nu = \frac{h_L D_h}{\lambda_L}$
Ka_L	Nombre de Kapitza	$Ka = \frac{g \mu_L^4}{\rho_L \sigma_L^3}$
We_L	Nombre de Weber	$We_L = \frac{1}{4} \frac{\rho_L \delta_L u_{m,L}}{\sigma_L}$
Bo	Nombre d'ébullition	$Bo = \frac{q_{transf}}{\dot{m} L_v}$
Co	Nombre de confinement	$Co = \frac{\sigma}{g(\rho_L - \rho_v) D_h^2}^{1/2}$
Pr_L	Nombre de Prandtl	$Pr_L = \frac{\mu_L C_p}{\lambda_L}$

Lettres grecques

α	volatilité relative (-)
δ_L	épaisseur du film liquide (m)
μ_L	viscosité dynamique du liquide (Pa s)
ρ	masse volumique (kg m ⁻³)
θ	température (°C)
σ	tension superficielle (N/m)
λ	conductivité thermique (W /m.K)

Paramètres géométriques du microcontacteur

d_C	profondeur d'un canal (m)
n_C	nombre de canaux (-)
s_C	espace entre deux canaux (m)
t_V	épaisseur de la veine vapeur (espace entre deux plaques) (m)
t_w	épaisseur de la plaque (m)
w_C	largeur d'un canal (m)
w_{nc}	largeur total occupée par les canaux (m)
w_P	largeur de la plaque (m)
Z	longueur d'un canal (m)

Indices

A (ou Alim.)	alimentation
C	canal
crit.	critique
D	distillat
élec	électrique
h	hydraulique
L	liquide
m	massique
mat.	matière
max.	maximum
p	paroi
S	soutirat
sat.	saturation
therm	thermique
vol.	volumique
V	vapeur
transf	transféré

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Agostini, B. et Bontemps, A., 2005. Vertical flow boiling of refrigerant R134a in small channels. *International Journal of Heat and Fluid Flow*, 26(2), 296-306.
- Ahmed, S. Y., et Kaparathi, R. (1963). Heat transfer studies of falling film heat exchangers. *Indian Journal of Technology*, 1, 377–381.
- Alhousseini, A; Tuzla, K; Chen, J (1998). "Falling film evaporation of single component liquids". *International Journal of Heat and Mass Transfer* 41 (12): 1623–1632
- Ben Jabrallah S., Belghith A. Corriou, J.P., Etude des transferts couplés de matière et de chaleur dans une cavité rectangulaire : application à une cellule de distillation, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 45 (2002) 891–904.
- Benz K., Jäckel K.P., Regenauer K.J., Schiewe J., Drese K., Ehrfled W., Hessel V. et Löwe H., Utilization of micromixers for extraction processes. *Chem. Eng. Technol.* 24 (2001) 11-17.
- Berenson P.J., Experiments on pool-boiling heat transfer. *J. Heat Transfer* 83, 3, 351-358 (1961)
- Bird R. B., Stewart W.E. et Lightfoot E. N., *Transport Phenomena*. New York Wiley, cop. (1960).
- Bouman, S., Waalewijn, R., De Jong, P., & Van Der Linden, H.J.L. J. (1993). Design of falling - film evaporator in the dairy industry. *Journal of the Society of Dairy Technology*, 46 (3), 100-106.
- Brunschwig Hieronymus. *Liber de arte distillandi de simplicibus*. (1500) et *Liber de arte distillandi de compositis* (1512) Strasbourg.
- Brutin, D., Topin, F. et Tadrist, L., 2003. Experimental study of unsteady convective boiling in heated minichannels. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 46(16), 2957-2965.
- Cachot T. *La distillation diabatique : Expérimentation et applications industrielles*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, France; 1992.
- Carey Van P. – *Liquid-vapor phase-change phenomena*. Taylor et Francis (1992).
- Celata, G.P., Cumo, M., Setaro, T., 1993. Forced convective boiling in binary mixtures. *Int. J. Heat Mass Transfer* 36, 3299–3309.
- Cerza M., Sernas V., A bubble growth model for nucleate boiling in thin, falling, superheated, laminar, water films, *Int. J. Heat Mass Transfer* 28 (7) (1985)1307–1316.
- Charpentier J.C, Four main objectives for the future of chemical and process engineering mainly concerned by the science and technologies of new materials production. *Chem. Eng. J.* 107 (2005) 3-17.

- Charpentier J.C, In the frame of globalization and sustainability, process intensification, a path to the future of chemical and process engineering (molecules into money). *Chem. Eng. J.* 134 (2007) 84-92.
- Chen, H., et Jebson, R.S. (1997). Factors affecting heat transfer in falling film evaporator. *Institution of Chemical Engineers*, 57 (C), 111-116.
- Chen L., Mewes D., Reviews of two-phase flow and flow boiling of mixtures in small and mini channels, *Int. J. Multiphase Flow* 32 (2004) 183–207.
- Chun, K. R., et Seban, R. A. (1971). Heat transfer to evaporating liquid films. *Transactions of the ASME, Journal of Heat Transfer*, 93 (C), 391-396.
- Chun, K. R., and R. A. Seban, "Performance Prediction of Falling Film Evaporators," *J. Heat Transf*, 94, 432 (1972).
- Collier, J.G. et Thome, J.R., 1996. *Convective boiling and condensation*, Oxford University Press.
- Dupont, V., Thome, J. et Jacobi, A., 2004. Heat transfer model for evaporation in microchannels. Part II: Comparison with the database. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 47(14-16), 3387-3401.
- El-Genk, M. and Saber, H., 2001. Minimum thickness of a flowing down liquid film on a vertical surface. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 44(15), 2809-2825.
- El Haj Assad, M., et Lampinen M. J. (2002). Mathematical modeling of falling liquid film evaporation process.
- Fenske, M. R.: Fractionation of Straight-Run Pennsylvania Gasoline, *Ind. Eng. Chem.*, 1932, 24, 482-485
- Fonyo, Z., Fabry, G., Vegyipari művelettani alapismeretek, Nemzeti Tankönyvkiadó Rt., Bp, 1998.
- Fujita T., Ueda T., Heat transfer to falling liquid films and film breakdown I. Subcooled liquid films, *Int. J. Heat Mass Transfer* 21 (1976) 97–108.
- Fujita T., Ueda T., Heat transfer to falling liquid films and film breakdown II. Saturated liquid films with nucleate boiling, *Int. J. Heat Mass Transfer* 21 (1978) 109–118.
- Fulford, G.D., 1964. The flow of liquids in thin films. *Adv. Chem. Eng.* 5, 151-236.
- Ganic, E. et Getachew, D., 1986. Effects of surface condition and working fluid on liquid film breakdown during heat transfer, *Proceedings of the International Heat Transfer Conference*. p. 1931-1936.
- Gielens C., Tong H.D., van Rijn C.J.M., Vorstman M.A.G. et Keurentjes J.T.F, Microsystem technology for high-flux hydrogen separation membranes. *Journal of Membrane Science* 243 (2004) 203-213F.

- Greco, A., Vanoli, G.P., 2005a. Flow boiling heat transfer with HFC mixtures in a smooth horizontal tube. Part I: experimental investigations. *Exp. Therm. Fluid Sci.* 29, 189–198.
- Greco, A., Vanoli, G.P., 2005b. Flow boiling heat transfer with HFC mixtures in a smooth horizontal tube. Part II: assessment of predictive methods. *Exp. Therm. Fluid Sci.* 29, 199–208.
- Grimley, T. G., Mudawar, I., and Incropera, F. P., 1988, "CHF Enhancement in Flowing Fluorocarbon Liquid Films Using Structured Surfaces and Flow Deflectors," *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. 31, pp. 55-65
- Gropp, U., Schnabel, G. et Schluender, E.U., 1981. Influence of Liquid-phase Mass Transfer Resistance on the Selectivity during Partial Evaporation of Binary Mixtures in a Falling Liquid Film Apparatus. *Verfahrenstechnik*, 15(10), 725-728.
- Gropp, U., Schnabel, G. et Schluender, E.U., 1983. Effect of liquid-side mass transfer resistance on selectivity during partial evaporation of binary mixtures in a falling film. *International chemical engineering*, 23(1), 11-17.
- Grossman, G., 1986, "Heat and Mass Transfer in Film Absorption" in *Handbook of Heat and Mass Transfer*, Chermisinoff, N. P., ed., Gulf Publishing Company, Houston, 2, Chap. 6.
- Hardt S., Doffing F. et Penneman H., Simulation of Hydrodynamic dispersion in gas/liquid microreactors. In *MSM 2002-2002 International Conference on Modeling and simulation of Microsystems (2002)*. San Juan, Puerto Rico, USA: Computational Publications, Principia Scientia.
- Hartman Ryan L., Hemantkumar R. Sahoo, Bernard C. Yen, Klavs F. Jensen, Distillation in microchemical systems using capillary forces and segmented flow, *Lab Chip*, 2009, 1843
- Hessel, V., Ehrfeld, W., Golbig, K., Haverkamp, V., Löwe, H., Storz, M., Wille, C., Guber, A., Jänisch, K., Baerns, M.; "Gas/liquid microreactors for direct fluorination of aromatic compounds using elemental fluorine", in Ehrfeld, W. (Ed.) *Microreaction Technology: 3rd International Conference on Microreaction Technology*, Proceedings of IMRET 3, pp. 526 540, Springer Verlag, Berlin, (2000).
- Hessel V., Löwe H., Müller A., Kolb G., *Chemical microprocess engineering-processing and plants*. Wiley-VCH: Weinheim, Germany, 2005.
- Hessel V., Knobloch C., Löwe H., Review on patents in microreactor and microprocess engineering, *Recent Patent Chem. Eng.* 1 (2008) 1–16.
- Hoke, B. c., Jr., and J. C. Chen, "Mass Transfer in Evaporating Falling Liquid Film Mixtures," *AIChE J.*, 38(5), 781 (1992).
- Holladay J.D., Jones E.O., Phelps M. et Hu J., Microfuel processor for use in a miniature power supply. *Journal of Power Sources* 108 (2002) 21-27.

- Jähnisch K., Baerns M., Hessel V., Ehrfeld W., Haverkamp V., Löwe H., Wille Ch. Et Guber A., Direct fluorination of toluene using elemental fluorine in gas/liquid microreactors. *Journal of fluorine chemistry* 105 (2000) 117-128.
- Jin, W. X., Low, S. C., et Quek, T. (2002). Preliminary experimental study of falling film heat transfer on a vertical doubly fluted plate. *Desalination*, 152, 201-206.
- Kandlikar, S.G 'A general correlation for saturated two-phase flow boiling heat transfer inside horizontal and vertical tubes,' *ASME J. Heat Transfer*, Vol. 112, pp. 219-228, 1990.
- Kandlikar, S. et Grande, W., 2003. Evolution of microchannel flow passages-thermohydraulic performance and fabrication technology. *Heat Transfer Engineering*, 24(1), 3-17.
- Kandlikar, S.G. et Balasubramanian, P., 2004. An Extension of the Flow Boiling Correlation to Transition, Laminar, and Deep Laminar Flows in Minichannels and Microchannels. *Heat Transfer Engineering*, 25(3), 86.
- Kandlikar, S.G., 2006. *Heat transfer and fluid flow in minichannels and microchannels*, Elsevier.
- Kew, P. et Cornwell, K., 1997. Correlations for the prediction of boiling heat transfer in small-diameter channels. *Applied Thermal Engineering*, 17(8-10), 705-715.
- Krupiczka, R., Rotkege, A., et Ziobrowski, Z. (2002). Heat transfer to evaporating liquid films within a vertical tube. *Chemical Engineering and Processing*, 41, 23-38.
- Lallemand, M. (2005). Transfert en changement de phase. Ebullition libre. In *Techniques de L'ingénieur*, BE 8 235-1.
- Lazarek G.M., Black S.H., Evaporative heat transfer, pressure drop and critical heat flux in a small vertical tube with R-113, *International Journal of Heat and Mass Transfer* 25 (1982) 945– 960.
- Leidenfrost, J. G., "On the Fixation of Water in Diverse Fire," *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Vol. 9, pages 1153–1166 (1966).
- Löb P., Pennemann H., Hessel V. Men Y., Impact of fluid path geometry and operating parameters on l/l-dispersion in interdigital micromixers. *Chem. Eng. Sc.* 61 (2006) 2959-2967.
- McCabe, W. L.; Thiele, E. W.: *Graphical design of fractionating columns*, *Ind. Eng. Chem.*, 1925, 17, 605-612
- Minton, P. E., *Handbook of Evaporation Technology*, Noyes Publications, Park Ridge, NJ (1986).
- Miranda, V., et Simpson, R. (2005). Modelling and simulation of an industrial multiple effect evaporator: tomato concentrate. *Journal of Food Engineering*, 66, 203 – 210.

- Möllmann K. P., Lutz N. et Vollmer M., Thermography of microsystems. Proceedings InfraMation (2004).
- Moulijn J. A., Stankiewicz A., Grievink J. et Górak A., Process intensification and process systems engineering: A friendly symbiosis. Computers et Chemical Engineering 32 (2008) 3- 11.
- Nicolaiewsky, E.M.A. et Fair, J.R., 1999. Liquid Flow over Textured Surfaces. 1.Contact Angles. Industrial et Engineering Chemistry Research, 38(1), 284-291.
- Nukiyama S., The maximum and minimum values of the heat transmitted from metal to boiling water under atmospheric pressure, J. Soc. Mech. Engng Japan, (1934), 37:367-374.
- Numrich, R.: Falling film evaporation of soluble mixtures. In: Convective flow boiling. J.C.Chen ed., pp 335-338 Washington: Taylor et Francis 1 996
- Nusselt, W. (1916). Die oberflächenkondensation des Wasserdampfes, vdi-z, 60, 542-575.
- Obein T., Caractérisation d'un microréacteur à film tombant et étude de la fluoration directe de l'Anisole dans ce microréacteur. Thèse INPL/Rhodia (2006).
- Palen, J. W., "Falling Film Evaporation of Wide-Boiling-Range Mixtures Inside a Vertical Tube," PhD Diss., Dept. of Chemical Engineering, Lehigh University (1988).
- Palen, J., Wang, Q. et Chen, J., 1994. Falling film evaporation of binary mixtures. AIChE Journal, 40(2), 207-214.
- Peng X. F., et Wang B. X.. "Forced convection and flow boiling heat transfer for liquid flowing through microchannels," Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 36, No. 14, pp. 3421-3427, 1993.
- Peng X. F. et Peterson G. P. "The effect of thermofluid and geometrical parameters on convection of liquids through rectangular microchannels," Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 38, No. 4, pp. 755-758, 1995.
- Peng X. F. et Peterson G. P. "Convective heat transfer and flow friction for water flow in microchannel structures," Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 39, No. 12, pp. 2599-2608, 1996.
- Peng X. F. et Peterson G. P.. Forced Convection Heat Transfer of Single Phase Binary Mixtures through Microchannels, Exp. Thermal Fluid Sci., vol. 12, pp. 98-104, 1996.
- Peng X. F., Peterson G. P., et Wang B. X.. Flow Boiling of Binary Mixtures in Microchannel Plates, Int. J. Heat Mass Transfer, vol. 39, pp. 1257-1264, 1996.
- Phillips R.J. , Microchannel Heat Sinks, PhD thesis, Massachusetts Institute of Technology, 1987.
- Ponchon, M.: Application of graphs to the study of commercial fractional distillation, Tech. Moderne, 1921, 13, 20, 55

- Prost, J. S., Gonzalez M. T., et Urbicain, M. J. (2006). Determination and correlation of heat transfer coefficients in a falling film evaporator. *Journal of Food Engineering*, 4, 73,320-326.
- Ramshaw C. The incentive for process intensification. Page 1. 1st International Conference on Process Intensification for Chemical Industry, BHR Group, London, 1995. 3
- Riollet G., *Thermodynamique appliquée, L'exergie, Techniques de l'ingénieur. Génie énergétique*. 1992. B1212
- Rivero R. L'analyse d'exergie: application à la distillation diabatique et aux pompes à chaleur à absorption. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, France; 1993.
- Roustan M., *Transferts Gaz-Liquide dans les procédés de traitement des eaux et des effluents gazeux*. TEC&DOC 2003.
- Sardesai, R. G., J. W. Palen, and J. G. Thome, "Nucleate Pool Boiling of Hydrocarbon Mixtures," AICHE Meeting, Miami Beach, Paper , 127a (1986).
- Schlunder, E. U., "State of the Art of Heat and Mass Transfer," *Heat Exchanger Design Handbook*, Sec. 2.1.7, Hemisphere Publishing, Washington, DC (1983).
- Seban R. A. and Faghri A., Wave Effects on the Transport to Falling Laminar Liquid Films, *J. Heat Transfer* 100, 143 (1978)
- Shah R.K., London A.L., *Laminar Flow Forced Convection in Ducts, Advances in Heat Transfer* (suppl. 1), Academic Press, New York, 1978.
- Smith, R. A., *Vaporizers*, Wiley, New York (1986). *VDI-Wiirmealas (VDI Heat Handbook)*, 3rd ed., VDI-Verlag (1977).
- Smith, R. A., "Evaporation," *Heat Exchanger Design Handbook*, Sec. 3.5, Hemisphere Publishing (1983).
- Smitha B., Sridhar S. et Khan A.A., Solid polymer electrolyte membranes for fuel cell applications- review. *Journal of Membrane Science* 259 (2005) 10-26.
- Sorin M., Rheault F., "Thermodynamically Guided Intensification of Separation Processes", *Applied Thermal Engineering*, 7, pp. 1191- 1197, 2007.
- Sowata K. I., Kusakabe K., Design of microchannels for use in distillation devices, IMRET7, 2003.
- Stankiewicz A.I., Moulijn J.A. Process intensification: Transforming chemical engineering. *Chemical Engineering Progress*, January: 22-34, 2000.3, 4.5,211
- Sticklmair J.G., Fair J.R. *Distillation. Principles and practice*. Wiley, 1998

- Sundberg A., Uusi-Kyyny P., Alopaeus V., “Novel micro-distillation column for process development”, Chemical Engineering Research and Design, In Press, Corrected Proof, November 2008.
- Thome, J.R. et Shock, R.A., 1984. Boiling of multicomponent liquid mixtures,
- Thome J.R., *Boiling in microchannels: a review of experiment and theory*, Heat and Fluid Flow, (2004), 25:128-139.
- Tondeur, D., Kvaalen, E., Equipartition of entropy production. An optimality criterion for transfer and separation processes, Ind. et Eng. Chem. Res., 6, 50-56 (1987).
- Tondeur D., 2006, Optimisation thermodynamique: équipartition de production d'entropie, Techniques de l'ingénieur, BE 8017, 1-15, Paris, France
- Tondeur D., 2006, Optimisation thermodynamique: équipartition, exemples et applications Techniques de l'ingénieur, BE 8018, 1-19, Paris, France
- Tonkovich A.L., Jarosch K., Arora R., Silva L., Perry S., McDaniel J., Daly F., Litt B., Methanol production FPSO plant concept using multiple microchannel unit operations, Chem. Eng. J. 135 (2008) S2–S8.
- Tran, T., Wambsganss, M., Chyu, M., France, D., 1997. A correlation for nucleate flow boiling in small channels. In: Shah, R.K. (Ed.), Compact Heat Exchangers for the Process Industries. Begell House, pp. 353–363.
- Tran T.N., Chyu M.C., Wambsganss M.W., France D.M., Two phase pressure drop of refrigerants during flow boiling in small channels: and experimental investigation and correlation development, International Journal of Multiphase Flow 26 (2000) 1739–1754.
- Turner C., Shaw J., Miller B. et Bains V., Solvent extraction using Micro-Mesh reactors. Proceedings IMRET4 (2000) 334-340.
- Wan Y.S.S., Chau J.L.H., Gavriilidis A. et Yeung K.L., Design and fabrication of zeolite based microreactors and membrane, microseparators. Microporous and Mesoporous Materials 42 (2001) 157-175.
- Wang B. X. et Peng. X. F “Experimental investigation on liquid forced-convection heat transfer through microchannels,” Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 37, Suppl.1, pp. 73-82, 1994.
- Webb R.L., Gupte N.S., A critical review of correlations for convective vaporisation in tubes and tube banks, Heat Transfer Engineering 13 (3) (1992) 58±81.
- Wenzel, R. N. Resistance of Solid Surfaces to Wetting by Water. Ind. Eng. Chem. 1936, 28, 988.

- Whitt, F. R., "Performance of Falling Film Evaporators," *British Chem. Eng.*, 11, 1523 (1966).
- Wille Ch., Ehrfeld W., Haverkamp V., Herweck T., Hessel V., Löwe H., Lutz N., Möllmann K.P. et Pinno F., Dynamic monitoring of fluid equipartition and heat release in a falling film microreactor using real-time thermography. *Proceedings MicroTec 2000 VDE World Microtechnologies Congress, Hanover, Germany* (2000).
- Wootton R.C.R., DeMello A.J., Continuous laminar evaporation: micronscale distillation, *Chem. Commun.* (2004) 266–267.
- Yeong K.K., Gavriilidis A., Zapf R., Kost H.J, Hessel V. et Boyde A., Characterisation of liquid film in a microstructured falling film reactor using laser scanning confocal microscopy. *Experimental Thermal and Fluid Science* 30 (2006) 463-472.
- Yih, S. Modelling Heat and Mass Transport in Falling Liquid films. In *Handbook of Heat and Mass Transfer*; Cheremisinoff, P., Ed.; Gulf Publishing Co.: Houston, TX, 1986; Vol. 2, p 111.
- Yoshioka K. and Hasegawa S., An analytical model for displacement velocity of liquid film on a hot vertical surface, *Journal of Nuclear Science and Technology*, 12 (12), pp 735-741, 1975.
- Young, T. (1805) .*Phil.Trans.Roy.Soc.*95, 64.
- Yu W., France D.M., Wambsganss M.W., J.R. Hull, Twophase pressure drop, boiling heat transfer, and critical heat flux to water in a small-diameter horizontal tube, *Int. J. Multiphase Flow* 28 (2002) 927–941.

ANNEXES

Annexe A : DESCRIPTION DU MICROCONTACTEUR A FILMS TOMBANTS

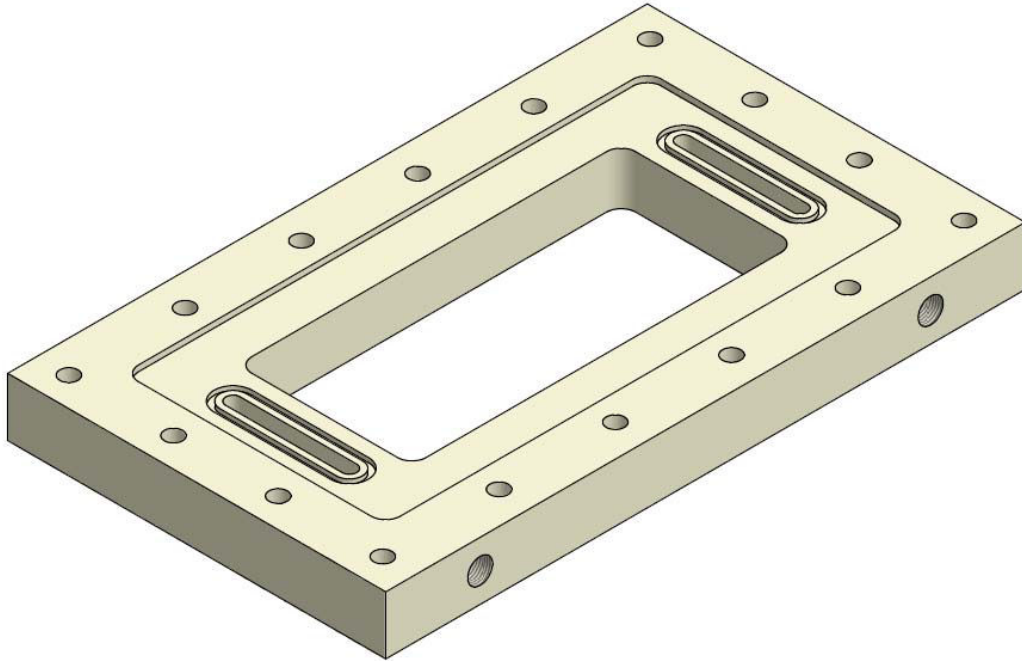


Figure annexe A-1 : Bloc de support (en Téflon® renforcé en verre) de la plaque micro-structurée

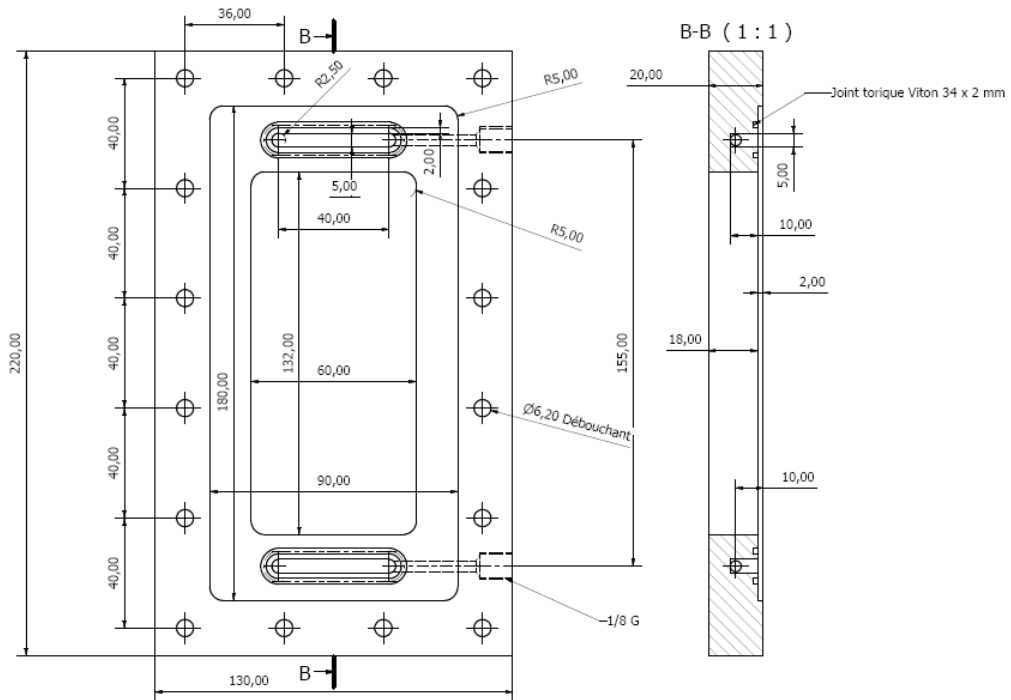


Figure annexe A-2 : Plan détaillé de la fabrication du bloc support de plaque micro-structurée

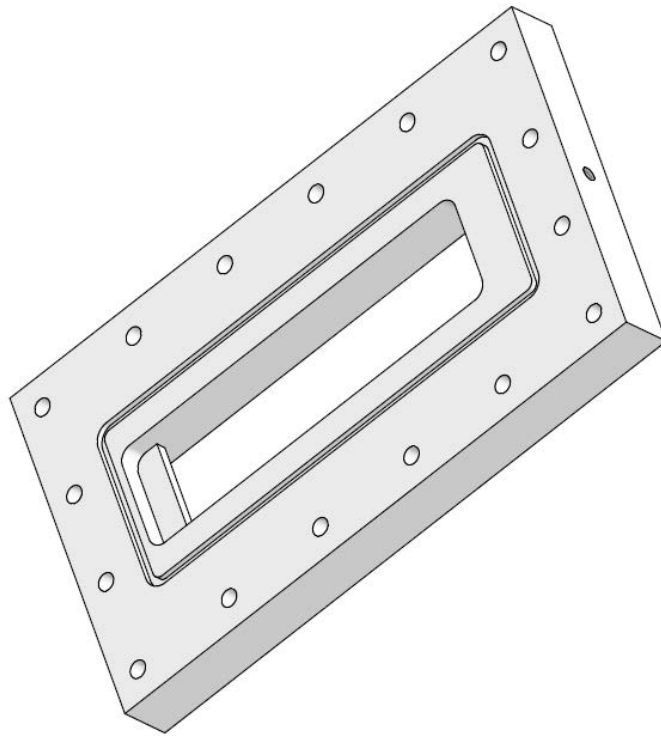


Figure annexe A-3 : Vue 3D de la plaque d'espace (la vapeur formée *in-situ* au sein du micro-contacteur circulaire dans l'espace creuse)

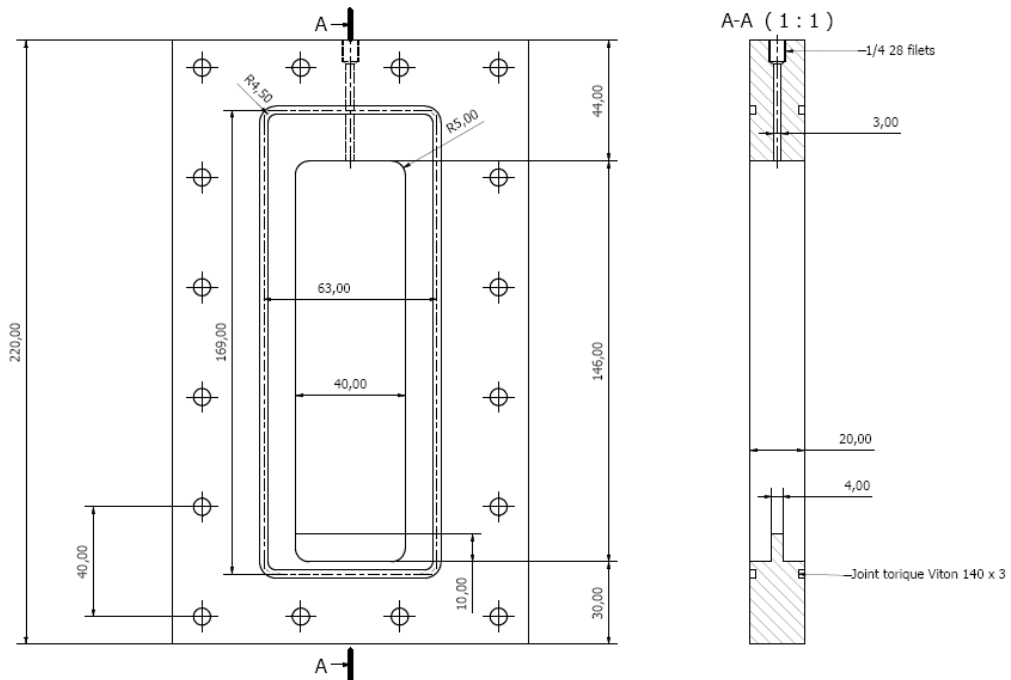


Figure annexe A-4 : Plan détaillé de la fabrication de plaque d'espace en Téflon[®] renforcé à hauteur de 25% en verre



Figure annexe A-5 : Broche d'usinage des micro-canaux HES510 (moteur broche à entraînement direct, ultra précision, haute fréquence), NAKANISHI Inc.

Annexe B : Résultats expérimentaux

Annexe B-1 Résultats expérimentaux d'étude d'ébullition du corps pur test (Ethanol absolu) : Chapitre III

A=1.51 g/min

Débits

debit alimentation		debit distillat		debit soustrait	
g/min	mol/s	g/min	mol/s	g/min	mol/s
1.516	5.484E-04	0.578	2.091E-04	0.938	3.393E-04
1.516	5.484E-04	0.960	3.473E-04	0.556	2.011E-04
1.516	5.484E-04	1.067	3.859E-04	0.449	1.625E-04
1.516	5.484E-04	0.954	3.453E-04	0.561	2.031E-04

X
-
0.381
0.633
0.704
0.630

Bilans thermiques

Qelec(W)	Qsensible (W)	Qlatente(W)	Qutile(W)	Qperdue (W)
33.50	3.72	8.08	11.80	21.70
43.05	3.70	13.42	17.11	25.94
51.87	3.52	14.95	18.46	33.41
60.54	3.82	13.22	17.04	43.50

qelec (W/m ²)	qtransf (W/m ²)
2256.9	983.2
2900.2	1426.2
3494.3	1538.7
4078.3	1419.9

Températures Plaques

Qelec(W)	Z(mm)	Tplaque_face A (K)	Tplaque_face B (K)
33.50	29	358.4	356.9
	55	361.6	357.5
	81	299.1	359.1
	107	360.8	353.9
43.05	29	362.5	359.4
	55	366.6	360.6
	81	299.3	362.1
	107	365.0	358.6
51.87	29	371.2	363.0
	55	376.9	365.9
	81	300.2	372.2
	107	377.2	371.6
60.54	29	383.8	391.3
	55	394.1	396.6
	81	301.1	399.5
	107	395.2	398.9

h_face B (W.m ⁻² .K ⁻¹)
172
154
124
354
173
150
130
190
130
104
73
75
35
31
29
30

A=2.86 g/min

Débits

debit alimentation		debit distillat		debit soustrait	
g/min	mol/s	g/min	mol/s	g/min	mol/s
2.856	1.033E-03	0.000	0.000E+00	2.856	1.033E-03
2.856	1.033E-03	0.856	3.097E-04	2.000	7.236E-04
2.856	1.033E-03	1.157	4.186E-04	1.699	6.148E-04
2.856	1.033E-03	0.886	3.206E-04	1.970	7.127E-04
2.856	1.033E-03	2.220	8.032E-04	0.636	2.302E-04

X
-
0
0.299722339
0.405050794
0.310291075
0.777256495

Bilans thermiques

Qelectrique(W)	Qsensible (W)	Qlatente(W)	Qutile(W)	Qperdue (W)
33.60	6.88	0.00	6.88	26.72
42.64	6.82	11.96	18.78	23.86
51.23	6.74	16.17	22.91	28.32
59.79	6.74	12.35	19.09	40.71
68.11	7.13	30.80	37.93	30.18

qelec (W/m ²)	qtransf (W/m ²)
2263.5	573.7
2872.5	1565.2
3451.4	1909.5
4028.1	1590.5
4588.4	3161.2

Températures Plaques

Qelectrique(W)	Z(mm)	Tplaque_face A (K)	Tplaque_face B (K)
33.60	29	355.0	356.9
	55	358.0	357.6
	81	300.8	358.9
	107	356.6	353.9
42.64	29	358.4	359.0
	55	363.6	359.2
	81	300.8	362.6
	107	362.5	359.8
51.23	29	368.5	362.3
	55	373.9	364.9
	81	300.7	369.1
	107	372.9	367.4
59.79	29	382.5	381.9
	55	391.4	387.1
	81	301.1	390.9
	107	392.1	390.6
68.11	29	381.7	372.3
	55	391.6	382.3
	81	301.1	389.3
	107	392.6	389.8

h_face B (W.m ⁻² .K ⁻¹)
99.6944676
89.49060331
73.56434926
206.542713
198.6673037
195.4422891
136.1565889
179.9842844
171.7331604
139.1287041
106.5509438
117.7832097
51.7197115
44.1840345
40.04128442
40.2853858
149.5585279
101.596654
82.94362342
81.82664146

A=3.53 g/min

Débits

debit alimentation		debit distillat		debit soustrait	
g/min	mol/s	g/min	mol/s	g/min	mol/s
3.526	1.276E-03	0.571	2.067E-04	2.955	1.069E-03
3.526	1.276E-03	0.952	3.444E-04	2.574	9.313E-04
3.526	1.276E-03	0.976	3.530E-04	2.550	9.227E-04
3.526	1.276E-03	1.068	3.864E-04	2.458	8.892E-04
3.526	1.276E-03	1.033	3.738E-04	2.493	9.018E-04

X
-
0.161996597
0.269952312
0.276711257
0.302924406
0.29306107

Bilans thermiques

Qelectrique(W)	Qsensible (W)	Qlatente(W)	Qutile(W)	Qperdue (W)
33.60	8.17	8.00	16.17	17.43
42.64	8.04	13.32	21.36	21.28
50.58	7.95	13.65	21.60	28.98
56.79	7.79	14.94	22.74	34.05
68.51	8.02	14.40	22.41	46.09

qelec (W/m ²)	qtransf (W/m ²)
2263.5	1347.5
2872.5	1780.4
3407.6	1799.9
3825.5	1894.7
4614.9	1867.9

Températures Plaques

Qelectrique(W)	Z(mm)	Tplaque_face A (K)	Tplaque_face B (K)
33.60	29	358.3	356.7
	55	361.4	357.3
	81	301.2	359.0
	107	360.5	354.0
42.64	29	363.8	358.9
	55	367.7	359.6
	81	302.2	362.1
	107	366.5	357.7
50.58	29	366.0	361.0
	55	370.3	362.9
	81	302.8	365.1
	107	368.6	360.6
56.79	29	369.4	363.2
	55	375.0	365.9
	81	303.5	369.5
	107	373.3	366.7
68.51	29	387.2	382.8
	55	397.7	388.7
	81	303.7	392.9
	107	397.9	393.1

h_face B (W.m ⁻² .K ⁻¹)
241.3789408
218.5030666
172.1276715
467.1994339
229.2760271
210.0281992
161.8817776
271.0143178
182.8735081
153.3554293
129.0752475
189.8412618
157.4017093
128.3572924
103.3534773
121.8521004
59.06358484
49.70898498
44.75116845
44.48363986

A=4.20 g/min

Débits

debit alimentation		debit distillat		debit soustrait	
g/min	mol/s	g/min	mol/s	g/min	mol/s
4.197	1.518E-03	0.571	2.067E-04	3.625	1.312E-03
4.197	1.518E-03	1.121	4.054E-04	3.076	1.113E-03
4.197	1.518E-03	1.407	5.092E-04	2.789	1.009E-03
4.197	1.518E-03	1.392	5.037E-04	2.804	1.015E-03
4.197	1.518E-03	1.000	3.616E-04	3.197	1.157E-03

X
-
0.136110184
0.267014574
0.335380457
0.331764968
0.238180559

Bilans thermiques

Qelectrique(W)	Qsensible (W)	Qlatente(W)	Qutile(W)	Qperdue (W)
33.60	9.37	7.99	17.37	16.23
42.85	9.15	15.68	24.83	18.02
50.80	9.01	19.68	28.69	22.11
56.67	8.97	19.46	28.43	28.24
72.54	10.26	13.81	24.07	48.47

qelec (W/m ²)	qtransf (W/m ²)
2263.5	1447.2
2886.4	2069.1
3422.5	2391.2
3817.8	2369.3
4886.8	2006.0

Températures Plaques

Qelectrique(W)	Z(mm)	Tplaque_face A (K)	Tplaque_face B (K)
33.60	29	358.5	356.8
	55	361.5	357.3
	81	303.9	359.0
	107	360.4	353.8
42.85	29	362.5	358.8
	55	366.4	359.5
	81	304.6	361.8
	107	364.5	356.9
50.80	29	366.9	360.8
	55	371.4	361.6
	81	305.2	365.0
	107	369.6	360.3
56.67	29	369.9	362.2
	55	375.0	365.0
	81	305.2	367.6
	107	373.2	362.9
72.54	29	397.2	406.6
	55	408.5	412.0
	81	304.4	413.9
	107	408.7	413.6

h_face B (W.m ⁻² .K ⁻¹)
258.1224504
234.8702551
183.5400772
536.051572
269.2722088
247.2918079
193.9207662
356.8721779
247.6307864
229.4789596
172.9747598
262.2554614
213.7713128
170.6482667
143.7286561
201.7590155
36.14726959
32.96713072
31.94251322
32.1405105

Annexe B-2 Résultats expérimentaux d'étude de faisabilité expérimentale de la séparation d'un mélange binaire test (éthanol –n-propanol) : Chapitre IV

$q_{elec}=2986 \text{ W/m}^2$, Plaque ($w_C=1000\mu\text{m}$, $d_C=200 \mu\text{m}$, $n_C=36$), espacement entre plaques= 2cm

Bilans débits et compositions :

Composition alimentation (xA) :	composition distillat (xD):	Composition soustrait (xS) :	débit alimentation (A):		débit distillat (D)		débit soustrait (S)	
			g/min	mol/s	g/min	mol/s	g/min	mol/s
0,485	0,510	0,476	0,965	3,019E-04	0,324	1,021E-04	0,641	2,000E-04
0,485	0,517	0,399	1,603	5,013E-04	0,927	2,923E-04	0,676	2,068E-04
0,485	0,570	0,430	2,014	6,299E-04	0,737	2,357E-04	1,277	3,937E-04
0,488	0,583	0,444	2,389	7,477E-04	0,563	1,807E-04	1,826	5,649E-04
0,488	0,739	0,463	2,961	9,268E-04	0,095	3,198E-05	2,866	8,909E-04

Bilans enthalpiques (calculs pertes thermiques-Quantité de chaleur réelle utilisée)

A (mol/s)	Q imposée (J/s)	Q perdue (J/s)	Q utile pour la séparation (J/s)	% perdue	TA	TS	TV
3,019E-04	44,74	36,88	7,86	82%	26,54301543	88,72791024	90,00447391
5,013E-04	44,55	27,52	17,03	62%	27,2527095	88,13389665	89,86593761
6,299E-04	44,15	28,28	15,87	64%	27,49241071	87,31640625	88,83692082
7,477E-04	44,15	29,45	14,70	67%	27,68449367	86,84821203	88,55990248
9,268E-04	43,94	33,70	10,24	77%	27,88507353	86,37558364	85,20120004

$q_{elec}=3935 \text{ W/m}^2$, Plaque ($w_C=1000\mu\text{m}$, $d_C=200 \mu\text{m}$, $n_C=36$), espacement entre plaques= 2cm

Bilans débits et compositions :

Composition alimentation (xA) :	composition distillat (xD):	Composition soustirat (xS) :	débit alimentation (A):		débit distillat (D)		débit soustirat (S)	
			g/min	mol/s	g/min	mol/s	g/min	mol/s
0,480	0,476	0,470	1,296	4,047E-04	0,613	1,912E-04	0,683	2,127E-04
0,480	0,482	0,472	1,799	5,618E-04	0,723	2,258E-04	1,076	3,354E-04
0,480	0,495	0,445	2,313	7,224E-04	1,734	5,436E-04	0,579	1,792E-04
0,480	0,514	0,421	2,572	8,035E-04	1,474	4,645E-04	1,098	3,378E-04
0,480	0,536	0,431	3,050	9,526E-04	1,360	4,313E-04	1,689	5,209E-04
0,480	0,553	0,431	3,507	1,095E-03	1,444	4,599E-04	2,062	6,359E-04
0,480	0,583	0,461	4,676	1,461E-03	0,762	2,447E-04	3,914	1,216E-03
0,480	0,588	0,456	6,067	1,895E-03	0,599	1,925E-04	5,469	1,697E-03
0,480	0,604	0,459	6,969	2,177E-03	0,423	1,366E-04	6,546	2,033E-03
0,480	0,702	0,469	7,902	2,468E-03	0,185	6,143E-05	7,717	2,404E-03

Bilans enthalpiques (calculs pertes thermiques - Quantité de chaleur réelle utilisée)

A(mol/s)	Q imposée (J/s)	Q perdue (J/s)	Q utile pour la séparation (J/s)	% perdue	TA (°C)	TS (°C)	TV (°C)
5%	61,954	49,83959738	12,11440262	% perdue	23,15458498	89,07375494	90,64271836
7%	61,27	46,08	15,19	75%	23,83242321	89,7506314	90,54024237
8%	59,25	29,76	29,49	50%	24,71806897	88,14312069	90,3039492
10%	58,14	31,11	27,03	54%	25,23429553	88,14723368	89,94236475
12%	57,69	30,60	27,09	53%	25,50291262	87,52695793	89,4989652
15%	57,24	27,69	29,55	48%	25,78802469	86,9562963	89,17007207
20%	57,24	32,83	24,41	57%	25,91259091	86,32261364	88,57505891
25%	57,24	30,74	26,50	54%	26,09653495	85,9756383	88,46457596
30%	57,01	28,90	28,11	51%	22,82837209	85,6515407	88,14972908
35%	57,01	29,25	27,76	51%	23,51177177	85,49681682	86,04766361

$q_{\text{elec}}=4588 \text{ W/m}^2$, Plaque ($w_C=1000\mu\text{m}$, $d_C=200 \mu\text{m}$, $n_C=36$), espacement entre plaques= 2cm

Bilans débits et compositions :

Composition alimentation (xA) :	composition distillat (xD):	Composition soustrat (xS) :	débit alimentation (A):		débit distillat (D)		débit soustrat (S)	
			g/min	mol/s	g/min	mol/s	g/min	mol/s
0,469	0,466	0,467	1,907	5,937E-04	1,049	3,265E-04	0,857	2,668E-04
0,469	0,464	0,468	2,219	6,910E-04	1,701	5,290E-04	0,518	1,613E-04
0,469	0,487	0,454	2,752	8,570E-04	1,835	5,742E-04	0,917	2,845E-04
0,469	0,504	0,422	3,307	1,030E-03	1,918	6,029E-04	1,388	4,271E-04
0,469	0,537	0,423	4,051	1,262E-03	1,325	4,200E-04	2,727	8,390E-04
0,469	0,565	0,443	5,485	1,708E-03	1,193	3,811E-04	4,292	1,328E-03
0,469	0,562	0,466	6,097	1,899E-03	0,821	2,620E-04	5,276	1,642E-03
0,469	0,588	0,462	7,428	2,313E-03	0,906	2,913E-04	6,522	2,028E-03

Bilans enthalpiques (calculs pertes thermiques - Quantité de chaleur réelle utilisée)

A (mol/s)	Q imposée (J/s)	Q perdue (J/s)	Q utile pour la séparation (J/s)	% perdue	TA	TS	TV
5,937E-04	72,323	52,77780826	19,54519174	73%	24,84320261	90,15045752	90,84345296
6,910E-04	71,361	42,69823389	28,66276611	60%	25,37461024	89,77071269	90,87720856
8,570E-04	69,536	37,40297531	32,13302469	54%	25,78576087	90,151875	90,44488475
1,030E-03	68,112	33,25056415	34,86143585	49%	26,30301205	88,52665663	90,12140093
1,262E-03	66,192	36,55148738	29,64051262	55%	26,71961538	87,8395858	89,49056301
1,708E-03	65,712	33,47075677	32,24124323	51%	26,98352113	86,79167254	88,93447079
1,899E-03	65,712	36,53459244	29,17740756	56%	27,24929648	86,39130653	88,99832952
2,313E-03	65,712	31,5595675	34,1524325	48%	27,45793651	85,9602381	88,47433586

A= 1.516 g/min (4,20E-04 mol/s), Plaque ($w_C=1000\mu\text{m}$, $d_C=200\ \mu\text{m}$, $n_C=36$), espacement entre plaques= 2cm

Bilans débits et compositions

				Alimentation (A)	Débit distillat (D)	Débit soutirat (S)
Q imposée (J/s)	x _A	x _D	x _S	mol/s	mol/s	mol/s
34,11	0,46	0,614	0,41	4,204E-04	1,1E-04	3,066E-04
44,34	0,46	0,522	0,38	4,204E-04	2,7E-04	1,463E-04
52,37	0,46	0,470	0,43	4,204E-04	3,3E-04	9,263E-05
61,95	0,46	0,466	0,44	4,204E-04	3,6E-04	6,524E-05
66,81	0,46	0,458	0,45	4,204E-04	3,7E-04	4,702E-05

Bilans enthalpiques (calculs pertes thermiques - Quantité de chaleur réelle utilisée)

Q imposée (J/s)	Q perdue (J/s)	Q utile pour la séparation (J/s)	% perdue	TA	TS	TV
34,11	25,41	8,70	74%	25,45	85,17	84,84
44,34	29,05	15,30	66%	26,04	87,14	89,77
52,37	34,84	17,52	67%	27,25	88,67	90,76
61,95	43,36	18,60	70%	28,07	90,39	90,83
66,81	47,36	19,45	71%	28,03	102,52	90,98

A=2.856 g/min (7,92E-04mol/s), Plaque ($w_C=1000\mu\text{m}$, $d_C=200\mu\text{m}$, $n_C=36$), espacement entre plaques= 2cm

Bilans débits et compositions

				Alimentation (A)	Débit distillat (D)	Débit soutirat (S)
Q imposée (J/s)	x _A	x _D	x _S	mol/s	mol/s	mol/s
34,48	0,457	-	0,455	7,921E-04	0,00E+00	7,92E-04
43,94	0,457	0,714	0,457	7,921E-04	2,41E-05	7,68E-04
51,44	0,457	0,562	0,435	7,921E-04	2,73E-04	5,19E-04
57,91	0,457	0,522	0,410	7,921E-04	4,69E-04	3,23E-04
66,58	0,457	0,508	0,403	7,921E-04	5,48E-04	2,44E-04

Bilans enthalpiques (calculs pertes thermiques_Quantité de chaleur réelle utilisée)

Q imposée (J/s)	Q perdue (J/s)	Q_utile pour la séparation (J/s)	% perdue	TA	TS	TV
34,48	24,99	9,49	72%	23,86	85,56	61,37
43,94	33,52	10,42	76%	24,91	86,39	85,78
51,44	30,96	20,48	60%	25,25	87,01	88,99
57,91	29,48	28,42	51%	25,50	87,55	89,77
66,58	34,94	31,65	52%	26,07	88,66	90,06

A= 4.1966g/min (1,16E-03mol/s), Plaque ($w_c=1000\mu\text{m}$, $d_c=200\ \mu\text{m}$, $n_c=36$), espacement entre plaques= 2cm

Bilans débits et compositions

				Alimentation (A)	Débit distillat (D)	Débit soutirat (S)
Q imposée (J/s)	xA	xD	xS	mol/s	mol/s	mol/s
34,11	0,47	-	0,46	1,164E-03	0,0E+00	1,164E-03
43,83	0,47	-	0,46	1,164E-03	0,0E+00	1,164E-03
51,75	0,47	0,553	0,43	1,164E-03	3,0E-04	8,686E-04
57,91	0,47	0,549	0,42	1,164E-03	5,0E-04	6,661E-04
66,92	0,47	0,510	0,43	1,164E-03	4,5E-04	7,121E-04

Bilans enthalpiques (calculs pertes thermiques - Quantité de chaleur réelle utilisée)

Q imposée (J/s)	Q perdue (J/s)	Q utile pour la séparation (J/s)	% perdue	TA	TS	TV
34,11	22,48	11,63	66%	25,33	85,39	59,90
43,83	32,12	11,71	73%	26,03	86,39	89,77
51,75	28,18	23,56	54%	26,49	86,99	89,17
57,91	26,26	31,64	45%	27,19	88,27	89,25
66,92	37,00	29,92	55%	27,99	89,08	90,00

Annexe B-3 Expressions utilisées pour le bilan enthalpique

La capacité calorifique en phase liquide est exprimée comme suit:

$$C_{p,l} = C_1 + C_2.T + C_3.T^2 + C_4.T^3 + C_5.T^4 \text{ (J/kmol.K)}$$

Les valeurs des coefficients (C_1, C_2, C_3, C_4, C_5) du propanol et de l'éthanol sont données par la littérature et consignées dans le tableau ci-dessous.

	C_1	C_2	C_3	C_4	C_5
n-propanol	1,58E+05	6,35E+02	1,97 E00	0	0
Ethanol	1,03E+05	-1,398E+02	-3,03 E-02	2,04E-03	-

- La capacité calorifique en phase gazeuse sera donnée par l'équation:

$$C_{p,v} = C_1 + C_2 \left[\frac{C_3}{T} / \sinh\left(\frac{C_3}{T}\right) \right]^2 + C_4 \left[\frac{C_5}{T} / \cosh\left(\frac{C_5}{T}\right) \right]^2 \text{ (J/kmol.K)}$$

Les valeurs des coefficients (C_1, C_2, C_3, C_4, C_5) du propanol et de l'éthanol sont données par la littérature et consignées dans le qui suit.

	C_1	C_2	C_3	C_4	C_5
<i>Ethanol</i>	4,92E+04	1,4577E+05	1,6628E+03	93900	744,7
<i>l-Propanol</i>	6,19E+04	2,02E+05	1,63E+03	129560	727,4

- La chaleur latente de vaporisation de l'éthanol et du n-propanol peut être déterminée à partir de la relation suivante :

(J/kmol) T_r est la température réduite ($T_r = T/T_c$).

Comme pour la détermination des capacités calorifiques, les constantes sont données par la littérature et leurs valeurs sont consignées dans le tableau suivant:

	C_1	C_2	C_3	C_4	T_c (°K)
Ethanol	5,5789E+07	0,31	0	0	543
n-propanol	6,8988E+07	0,6458	-0,5384	0,3317	536.71

Annexe C : Calculs d'incertitudes

1. Incertitudes sur les débits

Les débits liquide (en entrée et en sortie du système) sont déterminés par empotage, chaque débit est calculé de la manière suivante :

$$D_m = \frac{m_{\text{liquide}}}{t_{\text{prélèvement}}} = \frac{m_{\text{vide+liquide}} - m_{\text{vide}}}{t_{\text{prélèvement}}} \quad \text{Equation Annexe C - 1}$$

Pour calculer l'incertitude du débit on passe au logarithme népérien :

$$\ln(D_m) = \ln(m_{\text{vide+liquide}} - m_{\text{vide}}) - \ln(t_{\text{prélèvement}}) \quad \text{Equation Annexe C - 2}$$

$$\left| \frac{\Delta(D_m)}{D_m} \right| < \left| \frac{\Delta(m_{\text{vide+liquide}} - m_{\text{vide}})}{m_{\text{vide+liquide}} - m_{\text{vide}}} \right| + \left| \frac{\Delta(t_{\text{prélèvement}})}{t_{\text{prélèvement}}} \right| \quad \text{Equation Annexe C - 3}$$

Avec $\Delta(m_{\text{vide+liquide}} - m_{\text{vide}})$ et $\Delta(t_{\text{prélèvement}})$ représentant l'incertitude de mesure sur ces valeurs. Cette incertitude dépend de la précision de la balance utilisée. Dans notre cas, la balance est précise à 0,01 gramme près. Les incertitudes sur les pesés sont donc de cet ordre de grandeur.

$$\text{Or } \Delta(m_{\text{vide+liquide}} - m_{\text{vide}}) = \Delta(m_{\text{vide+liquide}}) + \Delta(m_{\text{vide}}) \quad \text{Equation Annexe C - 4}$$

$$\text{Donc } \Delta(m_{\text{vide+liquide}} - m_{\text{vide}}) = 0,02g$$

Le temps de prélèvement est mesuré avec un chronomètre, on estime que l'on est précis à une seconde près sur chaque prise de temps, donc au total on a une incertitude de 2 secondes sur le temps.

L'incertitude dépend donc du temps d'analyse et de la masse recueillie, cependant si l'on a un fort débit, on va avoir une masse importante en un temps court et inversement pour les faibles débits.

En faisant le calcul sur plusieurs mesures de débits, on arrive à l'incertitude moyenne suivante :

$$\left| \frac{\Delta(D_m)}{D_m} \right| \leq 4\%$$

2. Incertitudes sur la composition

On peut quantifier l'incertitude induite par le chromatographe, en effet, il peut y avoir des incertitudes provenant du fait que la seringue utilisée n'est pas parfaitement propre. Cependant l'ensemble des injections ont été faites par le biais d'un passeur d'échantillon automatisé, ce qui peut réduire les erreurs systématiques.

Le seul moyen de pouvoir quantifier les incertitudes sur les titres molaires serait de réaliser plusieurs expériences dans les mêmes conditions pour voir les écarts de sur les titres.

Afin d'évaluer l'incertitude du chromatographe, on calcul l'écart type des quatre analyses effectuées pour chaque donnée de toute une série d'analyse.

Sachant qu'on peut estimer que 99% des valeurs se trouvent dans l'intervalle de plus ou moins trois écarts types, on obtient ainsi :

$$\left| \frac{\Delta(x_{eth})}{x_{eth}} \right| < 1\%$$

3. Incertitudes sur les températures

Les températures retenues résultent d'une moyenne de toutes les températures données par l'acquisition lors du prélèvement. A certains moments, les températures varient beaucoup, comme par exemple à faible débit lorsqu'il y a assèchement des plaques, et à d'autres moments elle varie très peu.

Pour chaque acquisition de température, l'écart type est calculé pour avoir une idée de la dispersion des valeurs autour de la valeur moyenne.

La précision des mesures de températures est estimée à environ 1°C.

Cette précision des thermocouples est démontrée par les expériences réalisées avec de l'éthanol pur, le suivi de la température de vapeur saturante a permis de mesurer la température de vapeur saturante de l'éthanol à 78 °C, soit la température de saturation de l'éthanol pur à la pression atmosphérique.

Liste des Figures

Chapitre I : Analyse Bibliographique

FIGURE I. 1: DIAGRAMME FICTIF TEMPERATURE-COMPOSITION D'UN MELANGE IDEAL (VOLATILITE RELATIVE ELEVEE).....	11
FIGURE I. 2: SCHEMA D'UNE COLONNE DE DISTILLATION BINAIRE.....	13
FIGURE I. 3: DIAGRAMME FICTIF, TEMPERATURE-COMPOSITION D'UN MELANGE DE VOLATILITE RELATIVE FAIBLE, AVEC DES TEMPERATURES D'EBULLITION VOISINES (EXEMPLE : BINAIRE ACETATE D'ETHYLE / TRICHLORO ETHYLE).....	14
FIGURE I. 4: DIAGRAMME FICTIF, TEMPERATURE-COMPOSITION D'UN MELANGE DE VOLATILITE RELATIVE FAIBLE, AVEC PINCEMENT (EXEMPLE : BINAIRE EAU/ACETONE).....	15
FIGURE I. 5 COLONNE ADIABATIQUE FIGURE I. 6 COLONNE DIABATIQUE.....	20
FIGURE I. 7 COMPARAISON ENTRE DISTILLATIONS DIABATIQUE ET ADIABATIQUE SUIVANT LA METHODE DE MCCABE ET THIELE (RIVERO, 1993).....	21
FIGURE I. 8 : INTENSIFICATION DES PROCEDES ET SES COMPOSANTES : CLASSIFICATION SELON STANKIEWIZ ET MOULIJN (2000) SUIVANT LES METHODES ET LES EQUIPEMENTS.....	25
FIGURE I. 9: PRODUCTION D'ACETATE DE METHYLE : (DEVELOPPE PAR EASTMAN CHEMICAL INC.).....	25
FIGURE I. 10 REPRESENTATION IMAGEE DE L'USINE DU FUTUR : (DSM INC).....	26
FIGURE I. 11: REPRESENTATION SCHEMATIQUE D'UN DISPOSITIF DE DISTILLATION DE MELANGE BINAIRE DEVELOPPE PAR SOWATA ET KUSAKABE (2003).....	32
FIGURE I. 12: UNITE DE DISTILLATION DEVELOPEE PAR VELOCYS INC UTILISANT LA TECHNOLOGIE DES MICRO-CANAU (A) ET SCHEMA DE PRINCIPE DE LA DISTILLATION (B), SILVA <i>ET AL.</i> (2008).....	33
FIGURE I. 13 : REPRESENTATION D'UN DISPOSITIF DE DISTILLATION MICRO-STRUCTUREE, WOOTTON <i>ET AL.</i> (2004).....	34
FIGURE I. 14 : REPRESENTATION SCHEMATIQUE D'UNE COLONNE DE DISTILLATION AVEC GARNISSAGE MICRO-STRUCTUREE, SUNDBERG ET AL. (2008).....	35
FIGURE I. 15 : MICRO-PROCEDE DE DISTILLATION DE HARTMANN <i>ET AL.</i> (2009).....	35
FIGURE I. 16 : STRUCTURATION GEOMETRIQUE D'UNE PLAQUE POUR LA STABILISATION DU FILM TOMBANT.....	40
FIGURE I. 17: REPRESENTATION SCHEMATIQUE DU PERIMETRE MOUILLE, DE LA SECTION DE PASSAGE DANS UN MICRO-CANAL OUVERT.....	41
FIGURE I. 18 : PROFILOMETRIE DE LA SURFACE DU LIQUIDE A DIFFERENTS DEBITS VOLUMIQUES D'ETHANOL POUR UN CANAL DE LARGEUR $w_c = 300\mu\text{M}$ ET DE PROFONDEUR $d_c = 100\mu\text{M}$ [YEONG <i>ET AL.</i> (2006)].....	43
FIGURE I. 19 : REPRESENTATION SCHEMATIQUE DE LA RUPTURE D'UN FILM TOMBANT (A) ET D'UNE ZONE SECHE STABLE SUR UN SUPPORT NON STRUCTURE (PROPOSE PAR (EL-GENK ET SABER (2001)).....	44
FIGURE I. 20: MISE EN EVIDENCE DES SURFACES DE CONTACTS ENTRE LE FILM LIQUIDE ET LA PLAQUE DANS LE CAS D'UNE PLAQUE MICRO-RAINUREE ET D'UNE PLAQUE LISSE : DANS UN CANAL LE LIQUIDE EST EN CONTACT AVEC TROIS PAROIS CONTRE UNE SEULE POUR UNE PLAQUE LISSE.....	45
FIGURE I. 21: REPRESENTATION DE L'ANGLE DE CONTACT D'UNE GOUTTE DE LIQUIDE SUR UNE SURFACE SOLIDE.....	47
FIGURE I. 22: SUIVI DU DEPLACEMENT DU FRONT LIQUIDE (ACETONITRILE) SUR UNE PLAQUE A MICRO CANAU OUVERTS EN FONCTION DU TEMPS. UN TRACEUR A ETE AJOUTE AU LIQUIDE AFIN D'AMELIORER LA RESOLUTION DES PHOTOGRAPHIES [HESSEL <i>ET AL.</i> (2000)]......	49
FIGURE I. 23:ÉQUIPARTITION D'UN LIQUIDE DANS DES MICRO-CANAU VERTICAUX OUVERTS ($1200 \times 400\mu\text{m}^2$). LE LIQUIDE (ISO-PROPANOL) EST CHAUFFE A 31°C , LE DEBIT VOLUMIQUE EST DE 4 ML/MIN [MÖLLMANN <i>ET AL.</i> (2004)]......	49
FIGURE I. 24 : COURBE D'EBULLITION EN VASE DE NUKIYAMA (1934) POUR L'EAU PURE.....	50
FIGURE I. 25: REPRESENTATION SCHEMATIQUE DE L'EFFET LEIDENFROST.....	52
FIGURE I. 26: DIFFERENTS REGIMES D'EBULLITION DANS UN TUBE EVAPORATEUR VERTICAL (COLLIER ET JOHN R. THOME 1996).....	54
FIGURE I. 27: REPRESENTATION SCHEMATIQUE DU CYCLE D'EBULLITION SUR UNE PAROI [CAREY, 1992].....	55
FIGURE I. 28: REPRESENTATION SCHEMATIQUE DE L'EVAPORATION D'UN FILM TOMBANT LAMINAIRE.....	57
FIGURE I. 29 : REPRESENTATION DU COEFFICIENT DE TRANSFERT ADIMENSIONNEL EN FONCTION DU NOMBRE DE REYNOLDS POUR DIFFERENTES CORRELATIONS DANS LE CAS DE L'EVAPORATION DE FILM TOMBANT POUR UN NOMBRE DE PRANDTL DE 6.3 (EAU A 20°C).....	60
FIGURE I. 30: REPRESENTATION SCHEMATIQUE DE L'EBULLITION NUCLEEE ET LA CROISSANCE DES BULLES DANS UN FILM TOMBANT, CERZA (1985).....	64
FIGURE I. 31 : CONDITIONS D'APPARITION DES ZONES SECHES AUX FLUX DE CHAUFFES ELEVES.....	66

Chapitre II : Matériel et Méthodes

FIGURE II. 1: VUE ECLATEE DU MICRO-CONTACTEUR A FILM TOMBANT	80
FIGURE II. 2: PHOTOGRAPHIE DU MICROCONTACTEUR A FILM TOMBANT	80
FIGURE II. 3: DETAILS ET VUE DE PROFIL DE LA PLAQUE MICRO-RAINUREE	84
FIGURE II. 4: MISE EN EVIDENCE DE L'EFFET D'AILETTES : EVOLUTION DE $A_{V/L}$ ET $A_{THERMIQUE}$ EN FONCTION DE LA LARGUEUR DES CANAUX.	87
FIGURE II. 5: INFLUENCE DE LA STRUCTURATION SUR LE DEBIT NECESSAIRE POUR MOUILLER LA PLAQUE LIQUIDE : ETHANOL ($\mu_L = 1.08 \cdot 10^{-3}$ PA.S ET $\rho_L = 789$ KG/M ³ A 20°C) (CF. TABLEAU II.2 POUR LES PLAQUES).....	88
FIGURE II. 6: ASPECT GLOBAL DE LA PLAQUE 1 ($w_C=300\mu M$, $d_C=100 \mu M$), MEB	90
FIGURE II. 7: ETAT DE SURFACE DE LA PLAQUE 1 ($w_C=300\mu M$, $d_C=100 \mu M$), MEB	90
FIGURE II. 8 : ASPECT GLOBAL DE LA PLAQUE 2 ($w_C=500\mu M$, $d_C=150 \mu M$), MEB	90
FIGURE II. 9: ETAT DE SURFACE DE LA PLAQUE 2 ($w_C=500\mu M$, $d_C=150 \mu M$), MEB.....	90
FIGURE II. 10 : ASPECT GLOBAL DE LA PLAQUE 3 ($w_C=1000\mu M$, $d_C=200 \mu M$), MEB	90
FIGURE II. 11: ETAT DE SURFACE DE LA PLAQUE 3 ($w_C=1000\mu M$, $d_C=200 \mu M$), MEB.....	90
FIGURE II. 12: ASPECT GLOBAL DE LA PLAQUE 4 ($w_C=2000\mu M$, $d_C=200 \mu M$), MEB	91
FIGURE II. 13: ETAT DE SURFACE DE LA PLAQUE 4 ($w_C=2000\mu M$, $d_C=200 \mu M$), MEB	91
FIGURE II. 14 : EMBLEMES DES THERMOCOUPLES SUR LES PLAQUES MICRO-STRUCTUREES	92
FIGURE II. 15: MISE EN ŒUVRE DE L'ACHEMINEMENT DES THERMOCOUPLES DANS LE SYSTEME. VUE DE FACE PAR ORDRE DE SUPERPOSITION : 1. LA PLAQUE MICRO-RAINUREE, 2.ELEMENT CHAUFFANT, 3. FEUILLE DE SILICONE ET 4. PLAQUE DE BRIDAGE.....	93
FIGURE II. 16: FONCTIONNEMENT DU MICRO-CONTACTEUR A FILMS TOMBANTS	95
FIGURE II. 17 : MONTAGE EXPERIMENTAL.....	97
FIGURE II. 18 : PHOTOGRAPHIE DE L'UNITE D'EVAPORATION DE CORPS PUR (ETHANOL) ET DE DISTILLATION DU MELANGE BINAIRE ETHANOL/N-PROPANOL DANS UN MICROCONTACTEUR A FILM TOMBANT.....	98
FIGURE II. 19: DISPOSITION DES THERMOCOUPLES SUR LE MICRO-CONTACTEUR.....	99
FIGURE II. 20: REPRESENTATION SCHEMATIQUE DE LA REGULATION DE LA TEMPERATURE DE LA VAPEUR EN SORTIE	101
FIGURE II. 21: DIAGRAMME T-XY POUR LE MELANGE BINAIRE ETHANOL/N-PROPANOL A P=101.3KPA.....	104
FIGURE II. 22: PHOTOGRAPHIE DU COLLECTEUR EN SORTIE DU MICRO-CONTACTEUR	107
FIGURE II. 23: CHOIX DES POINTS DE MESURES SUR LE MICRO-CONTACTEUR POUR LA MESURE DU TEMPS DE REPOSE	109
FIGURE II. 24 : METHODE GRAPHIQUE DE DETERMINATION DU TEMPS DE REPOSE.....	110
FIGURE II. 25(A-F): EVOLUTION DE LA TEMPERATURE EN FONCTION DU TEMPS POUR LES SIX POINTS DE MESURES CHOISIS (A=1,52G/MIN, $Q_{ELEC}=2290$ W/M ² , P=101,3KPA).....	111

Chapitre III : Caractérisation du système expérimental et étude du transfert thermique dans le micro-contacteur à film tombant

FIGURE III. 1 CHOIX DU THERMOCOUPLE DE REFERENCE POUR LE SUIVI DE LA TEMPERATURE DE PLAQUE (THERMOCOUPLE T6).....	117
FIGURE III. 2 : BILAN DE CHALEUR AUX BORNES DU MICRO-CONTACTEUR A FILMS TOMBANTS	118
FIGURE III. 3:METHODE D'EVALUATION DU COEFFICIENT DE TRANSFERT THERMIQUE.....	119
FIGURE III. 4: EVOLUTION DE LA TEMPERATURE DE LA PLAQUE (AU MILIEU DE LA PLAQUE) EN FONCTION DU FLUX DE CHAUFFE ELECTRIQUE, POUR DIFFERENTS DEBITS D'ALIMENTATION, CAS DE L'ETHANOL PUR. PLAQUE N° 3 : $W_C/D_C=5$, $D_H=0.33$ MM.....	121
FIGURE III. 5: EVOLUTION DU TAUX D'ETHANOL EVAPORE EN FONCTION DU FLUX DE CHAUFFE ELECTRIQUE, POUR DIFFERENTS DEBITS D'ALIMENTATION, CAS DE L'ETHANOL PUR. PLAQUE N° 3 : $W_C/D_C=5$, $D_H=0.33$ MM	122
FIGURE III. 6 : TEMPERATURE DE LA PLAQUE (AU MILIEU DE PLAQUE) EN FONCTION DU TEMPS A $Q_{ELEC}=3443$ W/M ² , ETHANOL PUR. PLAQUE N° 3 : $W_C/D_C=5$, $D_H=0.33$ MM.....	124
FIGURE III. 7 : TEMPERATURE DE LA PLAQUE EN FONCTION DU TEMPS A Z=29MM, Z=55MM ET Z=107MM-.....	125
FIGURE III. 8: EVOLUTION DU DEBIT D'ETHANOL EVAPORE EN FONCTION DU FLUX DE CHAUFFE TRANSFERE AU LIQUIDE, POUR DIFFERENTS DEBITS D'ALIMENTATION, CAS DE L'ETHANOL PUR. PLAQUE N° 3 : $W_C/D_C=5$, $D_H=0.33$ MM	128

FIGURE III. 9: EVOLUTION DU DEBIT D'ETHANOL EVAPORE EN FONCTION DU FLUX DE CHAUFFE TRANSFERE AU LIQUIDE, POUR DIFFERENTS DEBITS D'ALIMENTATION, CAS DE L'ETHANOL PUR. PLAQUE N° 3 : $w_c/d_c=5$, $D_h=0.33mm$	131
FIGURE III. 10: EVOLUTION DE FLUX DE CHAUFFE TRANSFERE AU FILM LIQUIDE EN FONCTION DE LA DIFFERENCE ENTRE LA TEMPERATURE DE LA PLAQUE ET LA TEMPERATURE DE SATURATION-POUR DIFFERENTS DEBITS D'ALIMENTATION, CAS DE L'ETHANOL PUR. PLAQUE N° 3 : $w_c/d_c=5$, $D_h=0.33mm$	132
FIGURE III. 11: EVOLUTION DU COEFFICIENT DE TRANSFERT DE CHALEUR EN FONCTION DE LA DIFFERENCE ENTRE LA TEMPERATURE DE LA PLAQUE ET LA TEMPERATURE DE SATURATION-POUR DIFFERENTS DEBITS D'ALIMENTATION, CAS DE L'ETHANOL PUR. PLAQUE N° 3 : $w_c/d_c=5$, $D_h=0.33mm$	135
FIGURE III. 12: EVOLUTION DU NOMBRE DE NUSSELT (Nu) EN FONCTION DU NOMBRE DE REYNOLDS(Re_L) : CORRELATIONS ETABLIES POUR LES MICRO-CANAU. COMPARAISON DES RESULTATS EXPERIMENTAUX AVEC LES CORRELATIONS DE LA LITTERATURE.....	137
FIGURE III. 13 : COMPARAISON ENTRE NOS DONNEES EXPERIMENTALES ET QUELQUES CORRELATIONS ETABLIES POUR LES MICRO-CANAU.....	139
FIGURE III. 14: EVOLUTION DU COEFFICIENT DE TRANSFERT DE CHALEUR ADIMENSIONNEL (H^*_L) EN FONCTION DU NOMBRE DE REYNOLDS(Re_L) POUR UN FILM TOMBANT EN EVAPORATION. COMPARAISON DES RESULTATS EXPERIMENTAUX AVEC LES CORRELATIONS DE LA LITTERATURE.....	140
FIGURE III. 15 : PREDICTIONS DE NOS MESURES PAR LA CORRELATION DE FUJITA ET UEDA (1978).....	142
FIGURE III. 16: REPRESENTATION SCHEMATIQUE DES PRINCIPAUX CHANGEMENTS OBSERVABLES LORS DU PASSAGE DE L'EBULLITION D'UN COMPOSE PUR A L'EBULLITION D'UN MELANGE BINAIRE, COLLIER ET THOME (1996).....	143
FIGURE III. 17: COURBES D'EBULLITION POUR UN CORPS PUR (ETHANOL) ET POUR UN MELANGE (ETHANOL/N-PROPANOL A 46% D'ETHANOL)- $2200W/m^2 < Q_{elec} < 4900W/m^2$	144

Chapitre IV : Potentiel du micro-contacteur à films tombants à séparer un mélange binaire éthanol/n-propanol

FIGURE IV. 1: PROFIL LONGITUDINAL DE LA TEMPERATURE A DIFFERENTS FLUX DE CHAUFFE ELECTRIQUES ($A=4,70 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$, $x_A=0,46$, $\theta_{sat.}=87^\circ\text{C}$).....	150
FIGURE IV. 2 : EVOLUTION DE LA TEMPERATURE AU MILIEU DE LA PLAQUE EN FONCTION DU FLUX DE CHAUFFE ELECTRIQUE ($A=4,70 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$, $x_A=0,46$, $\theta_{sat.}=87^\circ\text{C}$).....	152
FIGURE IV. 3:EVOLUTION DU FLUX DE CHAUFFE TRANSFERE AU FILM LIQUIDE EN FONCTION DE LA DIFFERENCE ENTRE LA TEMPERATURE DE LA PLAQUE ET LA TEMPERATURE DE SATURATION ($A=4,70 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$, $x_A=0,46$, $\theta_{sat.}=87^\circ\text{C}$, FLUX DE CHAUFFES ELECTRIQUES: 2290 W.m^{-2} , 2964 W.m^{-2} , 3503 W.m^{-2} , 3907 W.m^{-2} , 4446 W.m^{-2})- PLAQUE N°3	153
FIGURE IV. 4: EVOLUTION DU FLUX DE CHAUFFE TRANSFERE AU FILM LIQUIDE EN FONCTION DE LA DIFFERENCE ENTRE LA TEMPERATURE DE LA PLAQUE ET LA TEMPERATURE DE SATURATION ($A=4,70 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$, $x_A=0,46$, $\theta_{sat.}=87^\circ\text{C}$, FLUX DE CHAUFFES ELECTRIQUES: 2290 W.m^{-2} , 2964 W.m^{-2} , 3503 W.m^{-2} , 3907 W.m^{-2} , 4446 W.m^{-2})- PLAQUE N°3.....	154
FIGURE IV. 5 : TEMPERATURE DE LA PLAQUE (AU CENTRE) EN FONCTION DU TEMPS	156
FIGURE IV. 6: VARIABLES REDUITES EN TITRE DU SOUTIRAT (x_S/x_A) ET EN DEBIT DE SOUTIRAT (S/A) ET L'EFFICACITE D'EPUISEMENT (E) EN FONCTION DU FLUX DE CHAUFFE TRANSMIS AU FILM TOMBANT.	157
FIGURE IV. 7:DIAGRAMME T-XY DU MELANGE BINAIRE ETHANOL/N-PROPANOL A $P=101,3\text{kPa}$ -.....	159
FIGURE IV. 8: EVOLUTION EN VARIABLES REDUITES DES TITRES MOLAIRES EN DISTILLAT ET EN SOUTIRAT EN FONCTION DE LA DIFFERENCE DE TEMPERATURE $\theta_p - \theta_s - A=4,70 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$, $x_A=0,46$, $\theta_{sat.}=87^\circ\text{C}$; FLUX DE CHAUFFE ELECTRIQUES: 2290 W.m^{-2} , 2964 W.m^{-2} , 3503 W.m^{-2} , 3907 W.m^{-2} , 4446 W.m^{-2}).....	160
FIGURE IV. 9:EVOLUTION EN VARIABLES REDUITES DES TITRES MOLAIRES EN DISTILLAT ET EN SOUTIRAT EN FONCTION DE LA DIFFERENCE DE TEMPERATURE $\theta_p - \theta_s - A=7,4 \cdot 10^{-4} \text{ mol.s}^{-1}$, $x_A=0,46$, $\theta_{sat.}=87^\circ\text{C}$, FLUX DE CHAUFFES ELECTRIQUES: 2323 W.m^{-2} , 2960 W.m^{-2} , 3465 W.m^{-2} , 3901 W.m^{-2} , 4485 W.m^{-2}	162
FIGURE IV. 10: QUANTITE DE CHALEUR TRANSMIS AU FILM TOMBANT(Q), CHALEUR SENSIBLE ($Q_{sensible}$) ET CHALEUR LATENTE DE VAPORISATION ($Q_{latente}$) EN FONCTION DU DEBIT D'ALIMENTATION- $Q_{elec}=2986 \text{ W.m}^{-2}$, $x_F=0,46$, $\theta_{sat.}=87^\circ\text{C}$	163
FIGURE IV. 11: EVOLUTIONS DU DEBIT DE DISTILLAT (D) ET DE L'EFFICACITE D'EPUISEMENT (E) EN FONCTION DU DEBIT D'ALIMENTATION- $Q_{elec}=2986 \text{ W.m}^{-2}$, $x_A=0,46$, $\theta_{sat.}=87^\circ\text{C}$	165

FIGURE IV. 12: FLUX DE CHAUFFE TRANSFERE AU FILM LIQUIDE EN FONCTION DE LA DIFFERENCE ENTRE LA TEMPERATURE DE LA PLAQUE ET LA TEMPERATURE DE SATURATION ($\theta_p - \theta_s$) A DIFFERENTS DEBITS D'ALIMENTATION- $Q_{ELEC}=2986W.M^{-2}$, $x_A=0.46$, $\theta_{sat.}=87^{\circ}C$	165
FIGURE IV. 13: TEMPERATURE DE LA PLAQUE (AU CENTRE) EN FONCTION DU TEMPS - $Q_{ELEC}=2986W.M^{-2}$, $x_A=0,46$, $\theta_{sat.}=87^{\circ}C$	166
FIGURE IV. 14: EVOLUTION DE LA TEMPERATURE DE LA PLAQUE (AU MILIEU DE LA PLAQUE) EN FONCTION DU DEBIT D'ALIMENTATION, POUR DIFFERENTS DEBITS FLUX DE CHAUFFE ELECTRIQUES, $x_A=0,46$, $\theta_{sat.}=87^{\circ}C$...	166
FIGURE IV. 15: EVOLUTION DU FLUX DE CHAUFFE TRANSFERE AU FILM LIQUIDE EN FONCTION DE LA DIFFERENCE ENTRE LA TEMPERATURE DE LA PLAQUE ET LA TEMPERATURE DE SATURATION ($\theta_p - \theta_s$) A DIFFERENTS DEBITS FLUX DE CHAUFFES ELECTRIQUES ($Q_{ELEC}=2986W.M^{-2}$, $Q_{ELEC}=3934W.M^{-2}$ ET $Q_{ELEC}=4586W.M^{-2}$), $x_A=0.46$, $\theta_{sat.}=87^{\circ}C$	167
FIGURE IV. 16: EVOLUTIONS DE LA PUISSANCE DE SEPARATION (P_{SEP}) EN FONCTION DU DEBIT D'ALIMENTATION POUR DIFFERENTS FLUX DE CHAUFFE ELECTRIQUES ($Q_{ELEC}=2986W.M^{-2}$, $Q_{ELEC}=2986W.M^{-2}$, $Q_{ELEC}=2986W.M^{-2}$ - $x_A=0,46$, $\theta_{sat.}=87^{\circ}C$	170

Liste des Tableaux

Chapitre I : Analyse Bibliographique

TABLEAU I. 1: DIFFERENTS REGIMES D'ÉCOULEMENTS DE FILM TOMBANTS CLASSIQUES, CLASSIFICATION SUIVANT LE NOMBRE DE KAPITZA (YIH, 1986)	38
TABLEAU I. 2: ANGLES DE CONTACT DE L'EAU, L'ETHANOL ET LE N-PROPANOL SUR DU LAITON A 20°C [THOME ET SHOCK (1984)]	46
TABLEAU I. 3: CORRELATIONS POUR L'ÉVALUATION DU COEFFICIENT DE TRANSFERT DE CHALEUR EN FILMS TOMBANTS (EVAPORATION SANS EBULLITION)	62
TABLEAU I. 4 : QUELQUES CORRELATIONS DE TRANSFERTS DE CHALEUR DE TYPES NUSSELT EN MICRO-CANAU (MONOPHASIQUE)	70
TABLEAU I. 5: CONSTANTES EMPIRIQUES DE LA CORRELATION DE KANDLIKAR (EQUATION I.52). KANDLIKAR (1990)	71
TABLEAU I. 6: QUELQUES CORRELATIONS DE TRANSFERTS DE CHALEUR DE TYPES NUSSELT EN MICRO-CANAU. 74	74

Chapitre II : Matériel et Méthodes

TABLEAU II. 1: RESUME DE LA GAMME DE TAILLES DE MICRO-CANAU DES QUATRE DIFFERENTES PLAQUES UTILISEES	81
TABLEAU II. 2: PARAMETRES GEOMETRIQUES DES PLAQUES MICRO-RAINUREES EN LAITON	86
TABLEAU II. 3: PROPRIETES DE L'ETHANOL ET DU PROPANOL A 20°C, ET A P=101.3KPA DONNEES DU DDB (DORTMUND DATA BANK [®])	103
TABLEAU II. 4: PROPRIETES D'UN MELANGE EQUIMOLAIRE ETHANOL/N-PROPANOL EN EBULLITION A	104
TABLEAU II. 5: CONDITIONS OPERATOIRES DES EXPERIENCES EFFECTUEES- P=101.3KPA	112

Chapitre III : Caractérisation du système expérimental et étude du transfert thermique dans le micro-contacteur à film tombant

TABLEAU III. 1: CONDITIONS OPERATOIRES	116
TABLEAU III. 2: VALEURS DES COEFFICIENTS LA CORRELATION PROPOSEE ET INCERTITUDES	139

Chapitre IV : Potentiel du micro-contacteur à films tombants à séparer un mélange binaire éthanol/n-propanol

TABLEAU IV. 1: CARACTERISTIQUES GEOMETRIQUES DE LA PLAQUE N°3	147
TABLEAU IV. 2: CONDITIONS OPERATOIRES _PLAQUE N°3	148
TABLEAU IV. 3: REPRODUCTIBILITE DES MESURES: P=101,3 kPa – Q _{ELEC} =2986 W.M ⁻²	151

AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

Monsieur Vincent GERBAUD, Chargé de Recherche, INP-ENSIACET, Toulouse

Monsieur David BRUTIN, Maître de Conférences, Polytech Marseille, IUSTI, Marseille

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur KANE Abdoulaye

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,
une thèse intitulée :

**"Conception et Caractérisation d'un microcontacteur à film tombant : concept de
distillation microstructurée"**

NANCY BRABOIS
2, AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 3
F - 54501
VANDŒUVRE CEDEX

en vue de l'obtention du titre de :

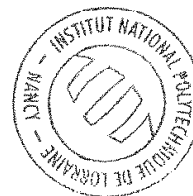
DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : « Génie des Procédés et des Produits »

Fait à Vandoeuvre, le 24 novembre 2010

Le Président de l'I.N.P.L.,

F. LAURENT



Conception et Caractérisation d'un microcontacteur à film tombant : concept de distillation microstructurée

Résumé:

Il est démontré que dans de nombreux procédés de transformation de la matière, les dégradations entropiques (et les consommations énergétiques qui en découlent) peuvent être minimisées en répartissant les flux d'énergies dans le volume plutôt qu'aux bornes du système (exemple de la distillation diabatique). Cependant la réalisation et la gestion de profils thermiques contrôlés (tels que des gradients thermiques et des étagements de température maîtrisés) dans les appareils compacts ne sont pas très souvent réalisées parce que souvent complexes et coûteuses (batterie d'échangeurs, gestion des fluides). Cette difficulté technologique affecte non seulement les performances énergétiques et les efficacités de transformation des appareils classiques de grandes tailles, mais aussi les réacteurs microstructurés dont les faibles dimensions internes associées à la grande conductivité thermique du matériau constituant les parois du contacteur entraînent souvent l'homogénéité thermique de l'appareil au détriment de la gestion des gradients thermiques. Par ailleurs, les garnissages utilisés dans les séparateurs sont de formes très complexes dans lesquels il est difficile de faire à la fois de la structuration thermique et hydrodynamique. Les systèmes microstructurés basés sur des géométries à plaques semblent offrir une possibilité intéressante de structuration thermique (contrôle et modulation de flux énergétiques pour l'obtention d'un profil thermique spécifique) et hydrodynamique (contrôle des transferts de matière, des temps de séjour, des pertes de charges etc.). Dans cette thèse, les réflexions menées sur ces verrous technologiques ont conduit à la conception d'un microcontacteur à film tombant. Ce microprocédé a été caractérisé d'un point de vue thermique et hydrodynamique. Une étude de faisabilité sur le potentiel de ce microcontacteur à séparer un mélange binaire d'alcools (ethanol/n-propanol) a été menée, ses performances ont été expérimentalement évaluées d'un point de vue qualitatif (pureté du distillat et du soutirant) et quantitatif (rapports des débits entrant et sortant), mais aussi en intégrant la notion d'exergie compositionnelle, également appelée puissance de séparation.

Mots clés : Film tombant, Intensification des procédés, Evaporation, Ebullition en microcanaux, Microprocédés de séparation

Design and Characterization of a falling film microcontactor: Microstructured distillation concept

Abstract:

In many processes of mass transformation, entropic degradations (and energy consumptions which results from) can be minimized by distributing heat flows in all process volume rather than boundaries (example: diabatic distillation). However it is difficult to control and impose thermal gradients on small scales because of their complexity and high costs (exchangers, fluids). This technological difficulty affects not only the performances and energy efficiencies of conventional devices (macro scales) but also small devices (e.g. microstructured reactors). Indeed, compact equipments with small dimensions generate some difficulties. First, the driving force inducing liquid flow by gravity is very small. Second, small size and high thermal conductivity of the material induce thermal homogeneity instead of managing temperature gradients in the system. In many separators, the used packing material has complex forms that make difficult thermal and hydrodynamic structurations. Microstructured devices, based on microchannel plate technologies, offer an interesting possibility of thermal structuration (control and modulation of energy fluxes) and hydrodynamics control (e.g. mass transfer, residence times, pressure drop etc). In this thesis, many discussions on these technological barriers led to the design of a new microstructured falling film contactor. The aim of the present work is to study heat transfer phenomena and liquid hydrodynamics in this device and, investigates the separation feasibility of a binary mixture of ethanol and n-propanol. Microcontactor performances were experimentally evaluated in terms of quality (bottom and top concentrations) and quantity (bottom and top flow rate ratios). To fully characterize contactor performances, the separation power concept (also called compositional exergy) was integrated.

Keywords: Falling film, Process intensification, Evaporation, Boiling, Separation Microprocess