Conception et caractérisation d'échangeurs-réacteurs à structuration multi-échelle

Meryem Saber

▶ **To cite this version:**

Meryem Saber. Conception et caractérisation d'échangeurs-réacteurs à structuration multi-échelle. Autre. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2009. Français. NNT : 2009INPL047N . tel-01748722

HAL Id: tel-01748722
https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01748722

Submitted on 29 Mar 2018

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

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

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
Ecole doctorale : RP2E

Nancy-Université INPL

École Nationale Supérieure des Industries Chimiques de Nancy
Laboratoire des Sciences du Génie Chimique, UPR 68 CNRS

Conception et Caractérisation d'Echangeurs-Réacteurs à Structuration Multi-échelle

THÈSE

Présentée à

L'institut National Polytechnique de Lorraine

Pour l'obtention du titre de

DOCTEUR DE L'INPL

Spécialité : Génie des procédés et des produits

Par

Meryem SABER

Ingénieur ENP-Alger

Thèse soutenue publiquement le 28 septembre 2009 devant le jury composé de :

Président :	M. Michael MATLOSZ	LSGC-INPL-ENSIC, Nancy-Université
Rapporteurs :	M^{me}. Katja HAAS- SANTO	IMVT, Karlsruhe (Allemagne)
	M^{me}. Agnès MONTILLET	GEPEA, Université de Nantes
Examinateurs :	M. Jean Marc COMMENGE	LSGC-INPL-ENSIC, Nancy-Université
	M. Laurent FALK	LSGC-CNRS, Nancy
	M^{me}. Lingai LUO	LOCIE, Polytech'Savoie

Remerciements

Les travaux de cette thèse ont été réalisés au sein du Laboratoire des Sciences du Génie chimique dont je remercie vivement tous les membres de ses équipes.
Mes plus vifs remerciements vont tout d'abord à mes deux encadrants de thèse pour leur contribution efficace dans l'aboutissement de ce travail.

Que Laurent Falk, mon directeur de thèse, trouve ici l'expression de ma gratitude pour m'avoir initié à la recherche, pour ses conseils, son œil critique et avisé ainsi que pour la confiance dont il a toujours fait preuve en mon égard.

Que Jean Marc Commenge, mon co-directeur de thèse, trouve ici l'expression de mes remerciements les plus sincères pour son efficacité, son aide précieuse et permanente, et pour toutes les connaissances qui m'a apporté au travers mes années de thèse…un grand merci Jean Jean.

Je remercie Agnès Montillet, Katja Haas- Santo et Lingai LUO de m'avoir fait l'honneur de juger mon travail ainsi que pour leurs remarques et commentaires constructifs. Je tiens aussi à remercier Michael MATLOSZ pour avoir présidé le jury de ma thèse ainsi que le projet européen Impulse auquel sont associés mes travaux de recherche.

Je remercie tout particulièrement Daniel Tondeur pour son implication dans mon sujet de thèse, pour ce qu'il a toujours montré comme intérêt pour mon travail et pour sa contribution scientifique et ses qualités humaines irréprochables.

Je remercie tout le personnel du laboratoire : l'atelier, le secrétariat, le service informatique et électronique,… pour leur contribution efficace au bon fonctionnement du laboratoire.

Une dédicace spéciale à Fati et Mous et leur ange Mélissa, à Farid et Hakima et leurs fils, Rayan, Racim et Mehdi, un grand merci pour leurs encouragements et leur soutien permanent.

Je remercie chaleureusement mes très chers amis pour l'ambiance très conviviale qui m'ont toujours apportés: Nainou et Abdou (les maitres GPM), Nabou, Lamia et Aichouche (Polytech freinds), Haloume, Ali, Mehdi, Nadia-N_2, Foued, Nassima, Stéphan, Sabine, Hala, Paola, Sophie, Abdel, Valério… et tous les jeunes docteurs, doctorants et stagiaires que j'ai côtoyé durant ma thèse.

Mille mercis à mes très chères tantes : Fathia, Radhia, Mina, Fatiha, Hafidha et Farida ainsi qu'à tous les membres de ma grande famille pour leur amour et leur soutien renouvelés.

Je finis par exprimer ma gratitude et ma reconnaissance envers toutes les personnes en qui j'ai trouvé un soutien continu.

Je dédie cette thèse à mes magnifiques grands-mères Dehbia et Baya
A ma très chère maman Leïla et mon très cher papa Khaled
A mon cher frère Amine et ma chère sœur Sissi
A tout ceux que je chérie profondément

Sommaire

INTRODUCTION GENERALE **9**

Chapitre I: *Systèmes microstructurés et extrapolation multi-échelle*

I.1. MICROSTRUCTURATION DES PROCEDES ET INTENSIFICATION **13**

I.2. MICROSTRUCTURATION ET MICROTECHNOLOGIES **14**

I.2.1. TECHNIQUES DE MICROSTRUCTURATION 14
I.2.2. TECHNIQUES D'ASSEMBLAGE 15

I.3. INTEGRATION DES MICROSYSTEMES DANS UN PROCEDE **15**

I.3.1. MICROREACTEURS 16
I.3.2. MICROECHANGEURS DE CHALEUR 16
I.3.3. MICROMELANGEURS ET MICROECHANGEURS DE MATIERE 18

I.4. EXTRAPOLATION DES MICROSYSTEMES **19**

I.4.1. EXTRAPOLATION PAR NUMBERING-UP 19
I.4.1.1. Numbering-up externe *19*
I.4.1.2. Numbering-up interne *20*
I.4.2. SURETE DU PROCEDE 20

I.1.DISTRIBUTION DU FLUIDE ET SYSTEMES DE DISTRIBUTION **21**

I.5.1. DISTRIBUTION DU FLUIDE 21
I.5.2. SYSTEMES DE CONNECTIQUE PAR APPROCHE MULTI-ECHELLE 21
I.5.2.1. Réseaux fractals et constructals *22*
I.5.2.2. Réseaux de canaux parallèles *25*
I.5.3. CONTRAINTES DE DIMENSIONNEMENT 26

I.6. IMPACT DE LA MALDISTRIBUTION SUR LES PERFORMANCES DES RESEAUX STRUCTURES **27**

I.6.1. REACTEURS EN RESEAU 28
I.6.2. ECHANGEURS EN RESEAU 30
I.6.3. RESEAUX DE CANAUX POUR LES PILES A COMBUSTIBLE 31

I.7. LIMITES DES SYSTEMES MICROSTRUCTURES **31**

I.7.1. PERTE DE CHARGE DANS LES MICROSYSTEMES 31
I.7.2. ENCRASSEMENT DES MICROSYSTEMES ET OPERATIONS DE CONTROLE 32
I.7.3. DUREE DE VIE DES MICROSYSTEMES 33

I.8. CONCLUSION **34**

Chapitre II: *Analyse hydrodynamique des structures multi-échelles*

II.1. RESEAUX MICROSTRUCTURES ET OBJECTIFS DE L'ETUDE **36**

II.1.1. CONFIGURATION GENERALE DES RESEAUX DE CANAUX MULTI-ECHELLES 36
II.1.2. OBJECTIFS DE L'ANALYSE HYDRODYNAMIQUE 38

II.2. MODELISATION ET ANALYSE DES RESEAUX DE CANAUX PARALLELES **39**

II.2.1. STRUCTURE ELEMENTAIRE A DEUX ECHELLES 39
II.2.2. EQUATIONS DE CONSERVATION ET BILANS 40

II.3. CRITERES DU CONTROLE HYDRODYNAMIQUE 43

II.3.1. LA MALDISTRIBUTION DU FLUIDE 43
I.3.2. LA PERTE DE CHARGE TOTALE 44

II.4. DISTRIBUTION DU FLUIDE SUR DES STRUCTURES A DEUX ECHELLES 45

II.4.1. DISTRIBUTION SYMETRIQUE AVEC UN MINIMUM AU CENTRE 47
II.4.2. EFFETS DES SINGULARITES 50
II.4.3. PERTE DE CHARGE GLOBALE DANS UNE CONFIGURATION A DEUX ECHELLES 54
II.4.4. DISTRIBUTION DES PUISSANCES DISSIPEES 56

II.5.MODELISATION DES RESEAUX MULTI-ECHELLES 58

II.5.1. APPROCHE D'ANALYSE DES RESEAUX MULTI-ECHELLES 60
II.5.2. CARACTERISATION HYDRODYNAMIQUE DES STRUCTURES MULTI-ECHELLES 62
II.5.3. DISTRIBUTION DES DEBITS SUR LE RESEAU MULTI-ECHELLE 65
II.5.4. CHOIX DES RESEAUX MULTI-ECHELLES 68
II.5.5. COMPARAISON DES RESEAUX MULTI-ECHELLES A VOLUME FIXE 69

II.6. METHODOLOGIE DE CONCEPTION 70

II.6.1. RELATION ENTRE LES DIFFERENTES ECHELLES D'UNE STRUCTURE 70
II.6.2. CONTRAINTES DE DIMENSIONNEMENT 71
II.6.3. REPARTITION DES MICROCANAUX ET SON IMPACT HYDRODYNAMIQUE 72

II.7. CONCLUSION 73

Chapitre III: *Caractérisation expérimentale de la distribution d'un fluide dans des réseaux structurés*

III.1. MESURES HYDRODYNAMIQUES DANS DES MICROSYSTEMES 76

III.1.1. MESURE DU COEFFICIENT DE FROTTEMENT 76
III.1.2. MESURE DE LA DISTRIBUTION DU FLUIDE 77

III.2. ETUDE EXPERIMENTALE DES STRUCTURES A DEUX ECHELLES 79

III.2.1. CONFIGURATIONS ANALYSEES 79
III.2.2. METHODES EXPERIMENTALES 81
III.2.2.1. Champs de vitesses 81
III.2.2.2. Simulations par Mécanique des Fluide Numérique (MFN) 84
III.2.3. TECHNIQUE D'ANALYSE D'IMAGES 84
III.2.3.1. Visualisation de l'écoulement d'un traceur coloré 84
III.2.3.2. Distribution des temps de séjour (DTS) dans un microcanal 86
III.2.3.3. Traitement numérique des images 88
III.2.4. DISTRIBUTION DU FLUIDE SUR LES DIFFERENTES PLAQUES 90
III.2.4.1. Distribution du fluide sur la plaque A 90
III.2.4.2. Distribution du fluide sur la plaque B 91
III.2.4.3. Distribution du fluide sur la plaque C 94
III.2.3.4. Comparaison des configurations 97

3. CONCLUSION 100

Chapitre IV: *Structuration multi-échelle des échangeurs thermiques*

IV.1. ECHANGEURS DE CHALEURS MICROSTRUCTURES 102

IV.2. DIMENSIONNEMENT DES ECHANGEURS MICROSTRUCTURES 103

IV.2.1. VALIDITE DES LOIS CLASSIQUES EN MICRO-ECHELLE 103
IV.2.2. INFLUENCE DES PROPRIETES PHYSIQUES DES FLUIDES DANS UN ECHANGEUR 104
IV.2.3. INFLUENCE DE LA GEOMETRIE DE L'ECHANGEUR SUR SON COMPORTEMENT HYDRO-THERMIQUE 105

IV.3. MODELISATION THERMIQUE DES ECHANGEURS EN RESEAU 105

IV.3.1. OPERATION DE TRANSFERT THERMIQUE 106
IV.3.3. EQUATIONS ASSOCIEES A L'ANALYSE THERMIQUE 107
IV.3.4. CALCUL DE LA PERTE DE CHARGE 111

IV.4. ANALYSE THERMIQUE D'UN RESEAU A DEUX ECHELLES 111

IV.4.1. PROFILS DE TEMPERATURE EN REGIME ETABLI 112
IV.4.2. IMPACT DE LA TEMPERATURE SUR LA DISTRIBUTION DE FLUIDE 114

IV.5. ANALYSE THERMIQUE A SURFACE D'ECHANGE CONSTANTE 115

IV.5.1. CARACTERISTIQUES THERMIQUES A NOMBRE DE NUSSELT CONSTANT 116
IV.5.2. CARACTERISTIQUES THERMIQUES A NOMBRE DE NUSSELT VARIABLE 122
IV.3.4. COMPARAISON A MALDISTRIBUTION CONSTANTE 125

IV.5. ANALYSE THERMIQUE DE LA STRUCTURATION MULTI-ECHELLE 125

IV.5.1. CONTRAINTES GEOMETRIQUES ET CONDITIONS OPERATOIRES 126
IV.5.2. IMPACT DE L'ARRANGEMENT DES CANAUX 126
IV.5.3. IMPACT DES EFFETS D'ENTREE 129
IV.5.4. RAPPORT DES PUISSANCES HYDRO-THERMIQUES 130
IV.5.5. IMPACT DE L'OPERATION DE TRANSFERT THERMIQUE 131

IV.6. CONCLUSION 132

Chapitre V: *Impact de la structuration multi-échelle sur les performances d'une réaction catalytique*

V.1. REACTEURS CATALYTIQUES MICROSTRUCTURES 134

V.2. DIMENSIONNEMENT DES MICROREACTEURS 135

V.3. MODELISATION D'UN REACTEUR CATALYTIQUE MULTI-ECHELLE 136

V.3. 1. MODELE DE REACTION CATALYTIQUE 136
V.3. 2. STRUCTURE GEOMETRIQUE DES REACTEURS ETUDIES 139
V.3.3. CRITERES DE COMPARAISON DES REACTEURS 139

V.4. REACTEUR CATALYTIQUE A DEUX ECHELLES 140

4.1. DISTRIBUTION DES TEMPS DE PASSAGE 140
V.4.2. IMPACT DE LA MALDISTRIBUTION SUR LE RENDEMENT DE LA REACTION 141

V.5. RESEAU DE MICROREACTEURS CATALYTIQUES 145

V.6. ROBUSTESSE DES RESEAUX CATALYTIQUES MULTI-ECHELLES 147

V.6.1. PRESENCE D'UN BOUCHAGE DANS UNE STRUCTURE A DEUX ECHELLES 148
V.6.2. PRESENCE D'UN BOUCHAGE DANS DES STRUCTURES A TROIS ET QUATRE ECHELLES 150
V.6.3. DIAGNOSTIC D'UN BOUCHAGE 151

V.4. CONCLUSION 151

Chapitre VI: *Hydrodynamique des réseaux de micromélangeurs en Y*

VI.1. APPLICATIONS DES MICROMELANGEURS EN PROCEDES 154

VI.1.1. MELANGE PASSIF ET ACTIF 155
VI.1.2. APPLICATIONS DES MICROMELANGEURS 156
VI.1.3. EXTRAPOLATION DES MICROMELANGEURS 156

VI.2. MODELISATION D'UN RESEAU DE MICROMELANGEURS 157

VI.2.1. DISTRIBUTION DES FLUIDES SUR UN RESEAU DE MICROMELANGEURS 159
VI.2.1.1. Bilan de matière et perte de charge 159
VI.2.1.2. Résolution numérique 162
VI.2.2. CALCUL DE PERTE DE CHARGE GLOBALE 163

VI.3. EXEMPLE D'APPLICATIONS DES RESEAUX DE MICROMELANGEURS 164

VI.3.1. CONTRAINTES GEOMETRIQUES 164
VI.3.2. MELANGE DE FLUIDES DE PROPRIETES PHYSIQUES VOISINES 165
VI.3.2.1. Systèmes de distribution et de collecte 165
VI.3.2.2. Variation de la fraction volumique 167
VI.3.2.3. Analyse de la perte de charge globale 169
VI.3.3. MELANGE LIQUIDE-LIQUIDE 170
VI.3.3.1. Distribution du fluide 171
VI.3.3.2. Résistance à l'écoulement et perte de charge équivalente 172
VI.3.4. DISPERSION GAZ-LIQUIDE 173
VI.3.4.1. Modélisation des écoulements gaz-liquide 173
IV.3.4.2. Résistance globale à l'écoulement 177

VI.4. CONCLUSION 178

CONCLUSION GENERALE 180

NOMENCLATURE 185

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES 188

ANNEXE.A. RESISTANCE HYDRODYNAMIQUE ET PERTE DE CHARGE SINGULIERE 197

ANNEXE.B. ETUDE DU BOUCHAGE DANS DES STRUCTURES MULTI-ECHELLES 200

RESUME 208

Introduction générale

Introduction générale

L'intégration de la microstructuration dans les équipements de génie chimique, soutenue par le développement de la microtechnologie et de la microfluidique est une approche innovante pour l'intensification des procédés. En effet, les unités standards qui ne sont pas adaptées à la production désirée, peuvent être dans certains cas substituées par des unités dotées d'une microstructuration interne, définissant ainsi des microvolumes dont la dimension caractéristique est adaptée aux phénomènes physiques et chimiques y opérant.

L'utilisation de microsystèmes, dont la dimension caractéristique est typiquement comprise entre quelques micromètres et quelques millimètres, présente un intérêt réel pour les processus chimiques et physiques. Cette voie d'intensification permet une amélioration des transferts de matière et d'énergie, une maîtrise plus précise des conditions opératoires et un contrôle approprié des distributions de temps de séjour pour des processus en continu. De plus, des surfaces d'échange importantes sont mises en jeu, non pas par apport énergétique externe, mais plutôt par la structuration géométrique interne qui favorise le contact entre espèces et/ou milieux différents.

Cependant, en plus de leurs différentes caractéristiques intrinsèques, les microsystèmes doivent permettre le traitement de débits industriels tout en conservant leurs dimensions caractéristiques opérationnelles. L'extrapolation des microsystèmes élémentaires à la macro-échelle par 'numbering-up' est un des moyens pour y parvenir. Cette opération vise à atteindre des macro-débits par duplication d'une même structure ou objet élémentaire. L'assemblage de tels éléments nécessite l'emploi de systèmes de distribution et de collecte mettant ainsi en jeu des macro, méso et microdimensions, d'où la nécessité de développer des procédés à structuration multi-échelle.

Les systèmes de distribution et de collecte constituent alors une partie intégrante des procédés microstructurés. Ils doivent permettre un fonctionnement identique pour chaque microsystème élémentaire impliqué dans le système global. Une mauvaise gestion des flux internes au procédé peut engendrer des problèmes de distribution diminuant ainsi le rendement global espéré et augmentant les risques liés aux opérations effectuées (par exemple, la formation de points chauds). Une mauvaise conception peut aussi être responsable d'une forte dissipation énergétique qui nécessite de fortes puissances de pompage, augmentant ainsi le coût de fonctionnement. Ces problèmes sont à l'origine d'une perte de performances du système lorsque des opérations physiques ou chimiques sont présentes.

La présente thèse aborde cette problématique d'extrapolation des microprocédés à l'échelle industrielle, en s'intéressant à la conception de réseaux multi-échelles et à leur caractérisation sous un ensemble de contraintes. Cet aspect important pour le développement industriel des procédés microstructurés s'inscrit dans un des axes fondamentaux du projet européen *IMPULSE* (*Integrated Multiscale Process Units with Locally Structured Elements*), lié à la caractérisation, l'analyse et le dimensionnement de ces nouveaux systèmes. L'objectif

consiste à développer une méthodologie de dimensionnement d'un réseau structuré multi-échelle, dont les performances globales sont analysées sous des contraintes de nature géométriques et/ou physiques.

Des réseaux de canaux, schématisant l'opération d'extrapolation de micro-objets en formant une arborescence, sont conçus et analysés. Cette voie d'extrapolation consiste à reproduire le motif de base à plusieurs niveaux en faisant intervenir plusieurs échelles imbriquées, définissant ainsi l'architecture globale de ces réseaux. On recherche notamment les propriétés géométriques favorisant l'équi-distribution entre les différentes branches du réseau, réduisant les pertes de charge, ainsi que l'impact de la structuration géométrique sur les phénomènes physiques et chimiques qui s'y déroulent. Ces objectifs sont abordés dans les différentes parties constituant ce manuscrit.

Il s'agit tout d'abord, d'étudier les différents aspects hydrodynamiques liés à la microstructuration des procédés et à leur extrapolation. Le modèle utilisé pour analyser différentes configurations et différentes dimensions caractéristiques est celui d'un réseau d'objets caractérisés par des résistances hydrodynamiques à l'écoulement. Il permet d'explorer des questions comme la répartition optimale d'un nombre total fixé de canaux entre différentes échelles, la relation entre les différentes échelles géométriques imbriquées dans le réseau, le nombre de canaux et d'échelles à mettre en jeu, l'arrangement de ces derniers, etc. Après une petite analyse bibliographique (*Chapitre I*), cette analyse hydrodynamique numérique est présentée au deuxième chapitre de ce manuscrit.

La difficulté de développer une métrologie adaptée à une faible dimension caractéristique est parmi les handicaps techniques soulevés par ces microsystèmes. A cet égard, une technique expérimentale non intrusive est employée pour l'examen de la distribution du fluide sur des modèles de réseaux multi-canaux (*Chapitre III*). En effet, à partir d'une analyse des distributions des concentrations d'un traceur coloré dans un réseau fluidique gravé sur des plaques transparentes, on mesure le débit dans chaque canal mis en parallèle.

Une étude conjointe de la conception géométrique et des phénomènes physiques et chimiques qui se manifestent dans ces réseaux fluidiques multi-échelles, est indispensable pour une exploitation optimale de ce type de procédés microstructurés. L'impact de la structuration multi-échelle sur les caractéristiques du réseau et ses conséquences en terme de performances globales, sont illustrés à travers deux applications mettant en jeu des phénomènes de transfert de chaleur, de matière et des réactions.

La première application en thermique est analysée au *Chapitre IV*. Ce dernier a pour objectif l'étude des phénomènes hydrodynamiques couplés à un transfert thermique dans les réseaux microstructurés, et d'évaluer en fonction des conditions géométriques et opératoires, les performances thermo-hydrauliques de ces derniers. En simulant le transfert convectif entre le fluide et une paroi isotherme, les performances de différents échangeurs microstructurés sont

analysées et comparées sur la base de critères liés à leur fonctionnement hydrodynamique ainsi qu'à leur efficacité thermique.

Ces mêmes réseaux sont ensuite considérés comme un assemblage de microréacteurs catalytiques où des réactions catalytiques consécutives sont mises en jeu. L'influence de la maldistribution hydrodynamique sur le rendement du produit désiré est examinée au *Chapitre V* en considérant différentes conditions géométriques et opératoires.

Une dernière application examinée pour les réseaux multi-canaux concerne le mélange de deux fluides différents dans un seul microsystème. Les réseaux conçus pour cette application se distinguent géométriquement des autres réseaux, puisqu'ils mettent en jeu deux systèmes de distribution pour deux fluides différents collectés dans un même micromélangeur. Un aperçu sur le comportement hydrodynamique global des milieux diphasiques est présenté dans ce dernier chapitre du manuscrit (*Chapitre VI*).

Des lignes directrices pour la conception et la caractérisation des réseaux multi-canaux sont systématiquement dégagées tout au long des différents chapitres.

Chapitre I

Systèmes microstructurés et extrapolation multi-échelle

Une nouvelle approche de conception multi-échelle, visant le développement de procédés microstructurés opérant avec de forts débits, consiste à intégrer en parallèle une multitude de micro-modules dédiés à des fonctions spécialisées et intégrant plusieurs technologies. Ces micro-éléments, comme les microréacteurs, les microéchangeurs et les micromélangeurs sont le siège de plusieurs phénomènes de transformation de la matière et de l'énergie, dont les variations peuvent être intensifiées dans les microdimensions composant ces différents modules. De nouvelles conceptions d'équipements microstructurés viennent régulièrement enrichir les procédés de transformations et élargir le champ d'application de la microstructuration.

Dans le présent chapitre, les différents microsystèmes nécessaires dans un procédé sont passés en revue. On s'intéresse plus particulièrement aux différents aspects relatifs à la problématique de leur extrapolation pour satisfaire les capacités de production conventionnelle. Dans le même esprit, des exemples d'études relatives à la structuration multi-échelle et ses conséquences sur le procédé, sont présentés.

I.1. Microstructuration des procédés et intensification

Les comportements et les phénomènes observés aux macro-échelles ne sont que les conséquences directes ou indirectes des phénomènes se manifestant aux petites échelles. L'amélioration d'une propriété globale ne peut se faire que si l'on agit localement sur les paramètres clés contrôlant la chaîne du système global. Le développement et l'intensification d'un procédé doivent tenir compte des liens entre toutes ses composantes et ses différentes échelles spatiales et temporelles (Charpentier, 2008).

L'intensification des procédés a été définie comme étant le développement de méthodes et de dispositifs innovants offrant, par rapport aux procédés standards, une amélioration de la qualité de production, une diminution du rapport taille/capacité, une réduction des quantités d'effluents et/ou de catalyseur, une diminution des coûts et de pertes énergétiques à iso-performance avec un respect plus important des contraintes environnementales (Stankiewicz et Moulijn, 2000).

La microstructuration joue un rôle déterminant dans le concept d'intensification. Elle vise essentiellement à tirer parti des avantages des microdimensions pour concevoir des procédés intensifiés, dans lesquels les échelles de conceptions géométriques sont adaptées aux phénomènes limitants. En effet, le confinement des microstructures et la faible dimension caractéristique dans un microcanal d'un objet microstructuré, permettent une amélioration des coefficients de transfert ainsi qu'un meilleur contrôle des conditions locales de fonctionnement (Commenge et al., 2005).

Les temps caractéristiques des opérations de transfert sont pour certains phénomènes (transfert de chaleur, réactions hétérogènes,…) inversement proportionnels à la dimension caractéristique du microcanal. Un gain considérable en efficacité est noté lorsque la dimension caractéristique passe d'une échelle métrique à une échelle micrométrique. Réciproquement, par rapport à une opération conventionnelle, ce gain peut aussi se traduire par une miniaturisation à

iso-efficacité. Ceci implique une maîtrise plus importante des phénomènes opérants, ce qui devrait accroître les indices de sécurité.

Ainsi, afin d'accélérer le développement de nouveaux produits, il serait possible de remplacer (là où il faut) les équipements standards de l'échelle pilote, par des équipements mieux adaptés aux objectifs désirés (Charpentier, 2007). L'intégration de ces équipements microstructurés conçus avec une multitude de canaux et de plaques microstructurées permet de développer rapidement des procédés miniaturisés, avec un faible coût et une efficacité importante. Ces objectifs doivent être atteints tout en minimisant les impacts environnementaux, en améliorant la sécurité des procédés et le contrôle automatique, ou encore en combinant de multiples opérations dans un ou quelques équipements (Hessel et al., 2004 ; Charpentier, 2007).

I.2. Microstructuration et microtechnologies

Depuis les années 80 le développement des microsystèmes ne cesse de s'enrichir. Avec les progrès récents des technologies de microfabrication, des microsystèmes innovants sont conçus pour des applications en génie chimique. Une large gamme d'équipements microstructurés pour la transformation de masse et d'énergie est actuellement développée (Hessel et al., 2004). Ces équipements microstructurés ont des dimensions caractéristiques internes généralement comprises entre 50 et 5000 µm.

A cet égard, plusieurs techniques de précision pour la fabrication de ces équipements, sont utilisées et améliorées selon les objectifs du procédé.

I.2.1. Techniques de microstructuration

Le micro-usinage par des faisceaux laser ou par enlèvement de copeaux, l'érosion par étincelles, la gravure chimique, le dépôt en phase vapeur ou encore, les techniques de plasma, l'épitaxie, etc., sont parmi les microtechnologies employées pour la fabrication des microsystèmes. Les matériaux mis en jeu sont le plus souvent choisis pour répondre aux besoins d'une large gamme d'applications.

Ces microsystèmes peuvent être fabriqués avec des matériaux standards, comme les alliages à base d'acier et de nickel, de titane, de tantale ou encore de verre et de polymère (Ehrfeld et al., 2000). Néanmoins, lorsqu'il s'agit de réaliser des opérations dans des conditions critiques (températures et pressions critiques, fluides critiques ou corrosifs, …), on fait souvent appel à des matériaux plus résistants chimiquement et physiquement, comme les matériaux céramiques à base de carbure de silicium, de nitrure de silicium, d'oxydes d'aluminium, d'oxyde de zirconium, etc. (Wang et al., 2008).

La gravure par lithographie est aussi une technique très répandue pour la fabrication des microsystèmes. La résine est déposée puis étalée sur un substrat (en silicium par exemple). Les zones de substrat qui ne doivent pas être gravées sont protégées par cette résine. Cette dernière est ensuite progressivement précuite pour évaporer les solvants présents. Des rayons ultraviolets

irradient le substrat recouvert de résine à travers un masque, composé du verre recouvert d'une couche de chrome définissant le motif du canal. Les parties de la résine exposées aux ultraviolets sont ainsi réticulées (résine positive). Après l'opération d'insolation, les motifs sont figés à l'aide d'une nouvelle étape de cuisson de la résine. L'ensemble est ensuite plongé dans un bain chimique pour nettoyer les parties de la résine non réticulées (Hessel et al., 2008).

Les technologies de verre (Watts et Haswell, 2005), la stéréolithographie et la technique de PDMS sont des techniques souvent employées pour des études de recherche en laboratoire. Des matériaux transparents sont employés pour permettre des mesures optiques sur les microsystèmes.

Le PDMS par exemple, est un élastomère transparent aux longueurs d'ondes comprises entre 240 et 1000 nm. Les microstructures (de l'ordre de 100 nm au minimum) en PDMS sont fabriquées à partir d'un moule de résine épaisse gravé par lithographie. Le PDMS adhère facilement sur le verre, améliorant ainsi l'étanchéité et facilitant les méthodes de mesures optiques. Cependant, ce matériau résiste très peu aux pressions et températures élevées, ce qui restreint son application à quelques études fondamentales.

I.2.2. Techniques d'assemblage

Selon le matériau employé pour la fabrication des modules microstructurés, plusieurs techniques peuvent se présenter pour l'assemblage de ces derniers. Les techniques de soudures thermiques pour des matériaux métalliques, sont le plus souvent employées. Le soudage par diffusion consiste à chauffer un empilement de plaques sous des températures et des pressions très élevées (jusqu'à 920°C et 276 bars pour l'acier inoxydable).

Pour des plaques en silicium par exemple, les techniques couramment utilisées reposent sur la création des liaisons entre ces plaques et ce après des traitements dans des bains chimiques ainsi que des étapes de cuisson à très hautes températures.

Des techniques d'enduction par contact et par tampographie, permettent le dépôt d'un film cohérent sur le substrat ainsi que des techniques de collage employant des résines Epoxy (facilitant l'assemblage des matériaux avec différents coefficients d'expansion), sont également employées. Elles restent toutefois imprécises et très sensibles à des conditions critiques (attaques chimiques, températures élevées).

I.3. Intégration des microsystèmes dans un procédé

Un procédé chimique microstructuré est, comme un procédé conventionnel, constitué d'une succession de plusieurs étapes incluant la microfluidique, le micromélange des produits, les microéchangeurs, la réaction chimique dans des microréacteurs et le traitement d'effluents.

Des écoulements mono ou polyphasiques, ainsi que des phénomènes de transfert et de réaction dans des microsystèmes sont présents dans la chaîne du procédé. Toutes ces opérations doivent être suivies et contrôlées à l'aide de microcapteurs et de microactionneurs.

I.3.1. Microréacteurs

Le déroulement des réactions dans des espaces miniaturisés offre beaucoup d'avantages pour la synthèse chimique. En plus de l'amélioration de la qualité des transferts, la mise en jeu de faibles quantités de réactifs, le contrôle précis des conditions opératoires de la réaction et la sûreté du procédé, sont aussi des caractéristiques attrayantes en faveur de leur intégration dans différents procédés de synthèse. Pour illustrer le potentiel de ces microsystèmes, une gamme importante de réactions simples, composées et biphasiques a été testée dans des microréacteurs de différentes géométries (Ehrfeld et al., 2000).

Les microréacteurs peuvent être employés pour des opérations chimiques courantes comme le reformage à la vapeur, l'oxydation, la déshydrogénation (Seris et al., 2008 ; Stefanidis et al., 2008 ; Cao & Gavriilidis, 2005), etc. Ils peuvent aussi être le siège de réactions gaz/liquide comme les fluorations, les chlorations, les hydrogénations, les sulfonations, les photos oxydations, etc.

Des systèmes mettant en contact continu deux phases, sans disperser l'une dans l'autre ainsi que des systèmes dispersifs, sont aussi employés comme microréacteurs. La microstructuration de l'équipement assure de grandes interfaces spécifiques comme c'est le cas par exemple des microréacteurs à film tombant et des microréacteurs à mailles microstructurées (Hessel et al., 2005).

Le développement des techniques de dépôt de catalyseurs a largement contribué au développement des systèmes réactionnels triphasiques (gaz-liquide-solide) dans les microréacteurs. Ces microsystèmes sont très souvent sollicités pour des études cinétiques de différentes réactions catalytiques en raison de la faible quantité de catalyseur mise en jeu. Des exemples d'application seront reportés dans le *Chapitre V* consacré à l'étude d'une réaction catalytique dans des réseaux microstructurés.

Les microréacteurs ne sont pas adaptés à tous les systèmes réactionnels et peuvent avoir de très nombreux inconvénients dans certains cas. Les temps de passage dans ces microsystèmes sont de l'ordre de la seconde ce qui limite leur utilisation souvent à des réactions rapides. Cependant, une structuration appropriée peut allonger les temps de passage dans ces systèmes et étendre leur utilisation à d'autres réactions plus lentes.

Les problèmes de bouchage et de nettoyage sont des points auxquels les microréacteurs sont très sensibles. Pour des raisons d'étanchéité et de sûreté, ces microsystèmes sont souvent conçus en bloc ce qui rend difficile leur entretien et accroît leurs possibilités d'encrassement.

I.3.2. Microéchangeurs de chaleur

Les microéchangeurs, tant au niveau de leur efficacité que de leur nécessité dans un procédé, sont parmi les microsystèmes les plus répandus sur le marché des microprocédés chimiques. Les échangeurs microstructurés sont conçus pour un large champ d'applications. Ils font partie de nombreux systèmes embarqués pour l'électronique, l'industrie automobile,

l'aéronautique, … en plus de leurs nombreuses applications dans les procédés chimiques, biologiques et agroalimentaires.

La microstructuration confère aux échangeurs une surface d'échange importante par rapport à leur volume apparent souvent miniaturisé et une forte compacité avec un important coefficient d'échange convectif. Des coefficients d'échange de l'ordre de 10000 $W.m^{-2}.K^{-1}$, peuvent être atteints pour des échangeurs multiplatulaires contre 200 $W.m^{-2}.K^{-1}$ pour des échangeurs conventionnels à double enveloppe.

Aux macro-échelles, on s'intéresse souvent au transfert local à la paroi où la conduction longitudinale est souvent négligeable. Aux micro-échelles, l'épaisseur de la paroi ne peut plus être négligée devant la dimension micrométrique du canal. La conduction longitudinale dans la paroi peut devenir, pour les très petites dimensions, un facteur thermiquement limitant.

Les corrélations établies pour les échanges thermiques dans des microdimensions, restent encore incertaines du fait de la complexité des mesures thermiques précises à ces petites échelles. Les corrélations usuelles restent toutefois plus adaptées pour des dimensions de canaux supérieurs à *100* micromètres.

Figure I.1. *Assemblage de plaques microstructurées en acier inoxydable, disposées pour une opération de transfert de chaleur à courants croisés (à gauche) et à contre courant (à droite).*

Le développement de microéchangeurs a désormais favorisé de manière spectaculaire l'apparition des microréacteurs. La *Figure I.1* montre deux microéchangeurs fabriqués par l'IMM (Institut für Mikrotechnik Mainz). Les deux échangeurs représentent un assemblage de plaques microstructurées, associées de manière à former un seul bloc compact. Une série de blocs peut être ensuite connectée pour atteindre des capacités de production plus importantes.

Le couplage des phénomènes de transfert et de réaction nécessite la combinaison de plusieurs opérations dans un seul appareil. La gestion des différents flux de matière et d'énergie doit être assurée aux différents stades de l'opération.

Un exemple du gain obtenu par couplage du transfert de chaleur et d'une réaction a été présenté par Iwasaki et Yoshida (2004). Ces auteurs ont examiné la distribution du poids moléculaire de plusieurs radicaux en employant un microréacteur. Ils ont trouvé que pour le cas de la polymérisation de l'acrylate du butyle, l'indice de polydispersité du polymère obtenu à l'aide du microréacteur était beaucoup plus petit que celui obtenu avec un réacteur discontinu standard. En effet, dans ce cas de réaction fortement exothermique, l'intensification et la bonne maîtrise des transferts thermiques dans les microdimensions du microréacteur, offrent un meilleur contrôle de la distribution du poids moléculaire. Cependant, dans le cas de la polymérisation du méthacrylate de benzyle et du méthacrylate de méthyle (réactions relativement moins exothermiques), l'impact du microréacteur sur l'indice de polydispersité est plus petit comparé au premier cas. Pour la polymérisation du benzoate de vinyle et du benzoate du styrène, aucune amélioration notable n'a été enregistrée en employant le microréacteur. Il a été ainsi démontré que le microréacteur est tout à fait efficace pour un meilleur contrôle de la distribution de poids moléculaires lorsqu'il s'agit d'une polymérisation radicalaire fortement exothermique tandis que son effet reste limité pour des polymérisations faiblement exothermiques. De nombreux autres exemples de couplages entre réaction et transfert de chaleur dans des systèmes microstructurés sont présentés dans la littérature (Renken et al., 2007 ; Krtschil et al., 2008).

I.3.3. Micromélangeurs et microéchangeurs de matière

Les unités de séparation peuvent aussi bénéficier du même principe d'intensification par microstructuration et/ou miniaturisation. Les microcontacteurs ou les microséparateurs en général, sont prévus pour des séparations physiques et éventuellement réactives. Là encore, les phénomènes de transfert sont intensifiés par la microstructuration qui multiplie le contact entre les phases en offrant de très importantes surfaces d'échange.

La domination du transfert de matière par la diffusion moléculaire se manifeste souvent en régime laminaire. Des modèles appropriés en terme de transfert de matière permettent de dimensionner et d'optimiser les micro-unités pour des procédés de séparation. Des microstructurations sont généralement développées pour stabiliser les interfaces entre les fluides immiscibles mis en jeu, rendant ainsi le transfert possible sur toute la surface du contact. L'intégration des membranes de séparation dans les microcontacteurs est aussi un microprocédé très répandu dans le domaine de la microséparation (Ehrfeld et al., 2000). Sur le plan expérimental, les études concernent essentiellement la microextraction et la microséparation membranaire. Quelques études concernent aussi la microdistillation (Sundberg et al., 2008 ; Tonkovich et al., 2008).

Le contact entre phases est aussi effectué d'une manière dispersive, en employant des micromélangeurs passifs ou actifs. Le mélange passif permet de tirer profit des microstructurations internes du fluide pour augmenter la surface de contact entre les fluides à mélanger, tandis que le mélange actif nécessite un apport énergétique externe (Hessel et al., 2005).

Les micromélangeurs sont le plus souvent destinés à des procédés pour la synthèse en chimie fine, des procédés d'émulsification et/ou de polymérisation. Des éléments théoriques seront discutés plus en détail dans le chapitre traitant les micromélangeurs (*Chapitre VI*).

Il faut tout de même préciser que toutes les opérations citées ci-dessus (réaction, transfert thermique et massique et mélange), peuvent être combinées dans un seul appareil ou microréacteur.

I.4. Extrapolation des microsystèmes

L'essor des microsystèmes est conditionné par la possibilité de satisfaire les exigences industrielles en terme de production annuelle. Le maintien d'une macro-production nécessite la mise en réseau d'un nombre élevé de microcanaux au sein du procédé et impose une distribution uniforme des flux à travers ces réseaux. La duplication de ces micro-objets est un moyen rapide pour atteindre la production à grande échelle. Cette manière d'extrapoler est appelée dans le domaine des microréacteurs, 'numbering-up' ce qui est équivalent à une extrapolation en nombre et qui correspond à une reproduction du même module unitaire plusieurs fois. Cette technique est souvent envisagée pour le développement des procédés microstructurés.

Le terme 'numbering-up' sera employé tout au long de ce document pour désigner cette opération de reproduction des micro-objets.

I.4.1. Extrapolation par numbering-up

L'extrapolation des procédés faisant appel au numbering-up consiste en une duplication successive du microsystème en un ensemble de microsystèmes qu'on reliera entre eux (*Figure II.1.a* ; *Figure II.1.b*). Ce même microsystème peut correspondre à un objet unique (micromélangeur, microréacteur…), on parle dans ce cas du numbering-up externe, ou à un assemblage d'objets (microcanal, réseaux de microcanaux, assemblage de plaques gravées, …). Il s'agit dans ce dernier cas du numbering-up interne (Schenk et al., 2004).

L'analyse d'une bibliographie, encore assez pauvre en études proprement dédiées au numbering-up et ses conséquences sur les performances de procédé, a permis de mettre l'accent sur la nécessité de bien optimiser la conception architecturale des flux dans un microprocédé.

I.4.1.1. Numbering-up externe

Le numbering-up externe consiste à reproduire la totalité de l'équipement en ne s'intéressant qu'à la connectique des entrées de ces derniers entre elles ainsi que leurs sorties. Dans ce cas, le système de connectique est totalement indépendant des microsystèmes à relier. Cette façon de réaliser le numbering-up assure la continuité de l'opération en cas d'anomalies dans l'un des systèmes reliés. Cependant, le contrôle du procédé dans ce cas requiert des capteurs et des actionneurs pour chaque microsystème, ce qui rajoute parfois une complexité au contrôle du procédé global et une charge économique supplémentaire. Ainsi le procédé n'est plus compact, notamment lorsque le nombre de microsystèmes à connecter devient important.

D'autre part, les différents systèmes d'alimentation et de connectique mobilisés pour l'opération, peuvent parfois engendrer des pertes de charge importantes en plus des maldistribution des flux externes.

I.4.1.2. Numbering-up interne

A l'égard des problèmes liés à l'extrapolation par numbering-up externe, un recours important au numbering-up interne a été constaté ces dernières années. En effet, au lieu de répéter la totalité du microsystème, c'est uniquement la partie fonctionnelle du microsystème qui est répétée (Schenk et al., 2004).

La structuration multi-échelle s'inscrit aussi dans le cadre du numbering-up interne. La parallèlisation des microcanaux (micro-objets en général) implique aussi l'introduction des systèmes de distribution et de connectique interne qui font partie du même bloc final. Cette connectique est souvent réalisée par l'ajout de conduites dont les dimensions caractéristiques peuvent parfois appartenir aux macro-échelles.

Schubert et al. (2001) ont présenté un échangeur en acier inoxydable structuré par des microcanaux fonctionnant à contre courants et à courants croisés. Cet échangeur a été développé pour plusieurs applications et pour permettre un traitement de 7 t /h d'eau. Une puissance de transmission de 200 kW avec un coefficient global de transfert de chaleur de 54000 $W.m^{-2}.K^{-1}$ ont été enregistrés.

Felthouse et al. (2005) ont étudié la possibilité d'utiliser des échangeurs à mini-échelle multitubulaire comme une plateforme pour la création de microréacteurs à multi-canaux. Ceci représente aussi une autre approche pour réaliser le numbering-up de microréacteurs. L'extrapolation équivalente est un réacteur multitubulaire à lit fixe qui consiste en des milliers de tubes parallèles (25-40 mm de diamètre et 3-6m de longueur) remplis par un catalyseur hétérogène.

Quelques exemples du numbering-up concernant les microcontacteurs, ont été présentés dans la littérature. On cite comme exemple l'assemblage de 10 micromélangeurs interdigitaux présentés par Ehrfeld et al. (1999). Un exemple de parallélisation de 120 microcontacteurs a été réalisé par les équipes de Central Research Laboratories (CRL, USA). Elles ont aussi testé l'effet de la section du canal et n'ont pas trouvé d'influence particulière sur la qualité de l'échange. Losey et al. (2001) ont étudié un contacteur gaz/liquide avec un arrangement d'une dizaine de canaux remplis de catalyseur afin de déterminer le coefficient de transfert de masse correspondant.

I.4.2. Sûreté du procédé

Un des avantages majeurs issu de la miniaturisation des procédés est la possibilité de développer in situ et en toute sécurité, des microsystèmes pour des réactions extrêmement dangereuses ou toxiques. Une gestion inappropriée de la chaleur dans le réacteur peut conduire à son emballement. Des réactions secondaires peuvent avoir lieu si la chaleur n'a pas été correctement maîtrisée.

L'extrapolation par numbering-up présente l'intérêt de la conservation de l'échelle caractéristique de l'opération réalisée, ce qui devrait réduire les risques causés par un changement d'échelle. En effet, les impacts des régimes d'écoulement, d'hydrodynamique et de transport, demeurent les mêmes indépendamment de l'extrapolation du procédé. Ceci peut aussi lever les risques intrinsèques engendrant des pertes dans la qualité du produit ainsi que des pertes énergétiques (Aubin et Xuereb, Techniques de l'ingénieur).

I.1.Distribution du fluide et systèmes de distribution

I.5.1. Distribution du fluide

L'extrapolation des procédés par numbering-up suppose, généralement, une simple multiplication du même microsystème. Cependant, les études effectuées sur des plaques contenant un ensemble de microcanaux ont montré que les performances des équipements microstructurés diminuent lorsque des problèmes de maldistribution commencent à apparaître (Kikutani et al., 2002 ; Iwasaki et al., 2006). La présence de la maldistribution peut même contrebalancer les caractéristiques intrinsèques des systèmes microstructurés et faire perdre ainsi l'intérêt de la microstructuration.

Il n'est donc pas possible d'extrapoler les micro-équipements à l'échelle industrielle par numbering-up sans considérer l'impact de la maldistribution sur les performances du procédé. En effet, pour assurer une efficacité globale maximale de tels réseaux, une organisation adéquate des flux internes dans le réseau est nécessaire. La structuration du système global doit assurer une équirépartition du fluide d'alimentation à travers tous les canaux, sans consacrer un volume important aux systèmes de distribution ou une perte de charge prohibitive. Un arrangement optimal d'un ensemble de canaux doit donc concilier une distribution uniforme des flux avec un réseau compact et une puissance de pompage la plus faible possible.

I.5.2. Systèmes de connectique par approche multi-échelle

Pour remédier aux problèmes géométriques causant des malrépartitions des flux dans les micro-objets, des systèmes de distribution doivent être conçus et optimisés. Une méthodologie multi-échelle pour la conception des réseaux avec une multitude de canaux consiste à construire des architectures arborescentes en subdivisant le flux initial en un ensemble de sous-flux répartis sur plusieurs échelles. Cette méthodologie, inspirée de l'approche constructale (Bejan, 1997 ; Bejan, 2000), définit à partir d'une géométrie élémentaire la connectique entre les canaux de différentes tailles caractéristiques. De plus, cette approche permet une extrapolation plus facile du microprocédé au macroprocédé sans modifier son architecture initiale et sa dimension caractéristique opérationnelle.

Le choix de la dimension des canaux et de leur organisation dans les réseaux doit satisfaire, non seulement les objectifs liées à la nature de l'opération mise en jeu (cinétiques des

réactions, surface d'échange, couplage des phénomènes de transfert…), mais aussi les contraintes hydrodynamiques (perte de charge, temps de séjour, distribution des flux…).

I.5.2.1. Réseaux fractals et constructals

Dans la pratique, le dimensionnement des réseaux multiéchelles pour des procédés microstructurés, doit répondre à un certain nombre de contraintes techniques, environnementales et/ou économiques. En absence de contraintes, la solution évidente qui permet de relier un nombre élevé de canaux avec un minimum de maldistribution consiste à alimenter chaque canal individuellement. Dés lors qu'un système de distribution est associé au réseau, le problème de maldistribution apparaît comme inévitable. Cependant, des systèmes de distribution peuvent s'avérer théoriquement efficaces de point de vue de la distribution (en absence des effets de singularités) comme par exemple le cas des distributeurs constructals dichotomiques qui consistent à subdiviser le fluide en une multitude de sous-fluides afin d'alimenter le nombre désiré de canaux.

Géométries constructales

Cette méthode de conception de ces réseaux, consiste à définir une architecture arborescente basée sur l'approche constructale présentée par Bejan (1997). La conception constructale s'inspire des systèmes naturels pour satisfaire les besoins en ingénierie ; en effet, les réseaux multi-échelles existent dans le corps humain comme par exemple : les systèmes pulmonaires et les vaisseaux sanguins, dans la biosphère comme les arbres et les rivières, dans la croissance des cristaux, dans le développement des réseaux urbains ou de communication, etc. Cette approche définit la géométrie d'une structure à partir de la micro-échelle jusqu'à la macro-échelle en se basant sur la connaissance des phénomènes prédominants aux différentes échelles. Ainsi, le comportement global du système peut être prédit à partir des échelles qui le composent (Bejan, 2000 ; Bejan et Tondeur, 1998).

Plusieurs auteurs ont employé cette méthodologie pour décrire et concevoir, sous un ensemble de contraintes, des réseaux de flux multi-échelles dans le but de distribuer un fluide depuis une source vers plusieurs puits tout en minimisant la résistance totale à l'écoulement. Ordonez et al. (2003), Bejan (1997, 2000) montrent que les formes symétriques et uniformes, lorsque l'objectif de la structuration géométrique est de minimiser la résistance à l'écoulement entre une source et des puits (ou un puits et des sources), se transforment en formes asymétriques multiéchelles où les flux sont successivement subdivisés.

Géométries fractales et arborescences

Mandelbrot (1967) a introduit la notion de « fractal » pour quantifier l'évolution de la forme d'une grandeur avec l'échelle d'observation. En effet, un objet est dit fractal, si sa mesure varie en variant la taille de l'unité de mesure. Les géométries fractales trouvent des applications dans de nombreux domaines des sciences de la nature et de la physique. La dimension fractale, à l'inverse de la dimension euclidienne, permet de décrire les formes irrégulières et de quantifier le

degré de complexité des objets naturels. Les géométries fractales possèdent généralement une autosimilarité interne. En effet, la géométrie de l'objet garde le même aspect à différentes échelles d'observation. A contrario, les conceptions constructales ne conservent pas forcément une dimension fractale, ni une autosimilarité à chaque échelle. Leur principal objectif est l'évolution de la géométrie dans un but de minimiser la résistance globale à l'avancement. Cependant, en ingénierie, cette évolution devrait aussi répondre à d'autres contraintes de dimensionnement qui peuvent être d'ordre techniques et/ou économiques.

Un exemple de réseau arborescent est généré à partir d'un canal principal de longueur L_0 et de diamètre D_0 qui donne lieu à deux nouveaux canaux de longueur L_1 et de diamètre D_1. A nouveau ces canaux se subdivisent à leur extrémité pour donner naissance à une nouvelle génération de canaux et ainsi de suite, la bifurcation est poursuivie à l'extrémité de chaque nouveau canal généré, jusqu'à atteindre le réseau désiré.

Les rapports de diamètres et de longueurs appartenant à deux échelles successives sont définis tels que :

$$\frac{L_k}{L_{k+1}} = N^{-1/D_L} \tag{I.1}$$

$$\frac{D_k}{D_{k+1}} = N^{-1/D_D} \tag{I.2}$$

où N représente le nombre de canaux générés à l'extrémité de chaque canal de l'échelle considérée. Dans le cas d'une bifurcation dichotomique (*Figure I.2*), ce nombre est égal à 2.

D_L et D_D sont les dimensions fractales correspondant à la longueur et au diamètre du canal respectivement.

Chen et Cheng (2005) ont étudié expérimentalement les capacités de transfert de chaleur dans ces systèmes arborescents. Les résultats montrent que ce nouveau type de conception multiéchelle génère une importante capacité de transfert de chaleur et requiert une faible puissance énergétique de fonctionnement.

Tondeur et Luo (2005) ont développé un distributeur arborescent pour distribuer le fluide à travers un nombre déterminé de microcanaux (ou un monolithe), répartis régulièrement sur une surface donnée. Ce type de structures est souvent conçu sous un ensemble de contraintes. Il peut ne pas être tout a fait fractal lorsqu'il ne satisfait pas une loi d'échelle constante entre deux échelles successives.

Figure I.2. *Distributeur arborescent pour la distribution du fluide à travers un réseau de microcanaux (perspective 3D et vue de dessus).*

Les critères d'optimisation de ces systèmes arborescents sont d'une part, la minimisation des coûts énergétiques en réduisant les pertes de charge et d'autre part, la miniaturisation des formes globales pour des applications en microfluidique (Tondeur et Luo, 2004 ; Tondeur et Luo, 2005 ; Luo et al.,2008). Peng et al. (2006) ont également montré que la perméabilité effective dans ce type de réseau multi-échelles est supérieure à celle déterminée pour un simple réseau de canaux en parallèle.

Cependant, selon les hypothèses d'analyse, les contraintes de fonctionnement et les conditions aux limites imposées, les résultats issus de l'analyse et de la comparaison du réseau arborescent avec le réseau à canaux parallèles, peuvent être différents. Certains auteurs ont montré que la capacité de transfert thermique d'un réseau parallèle est plus intéressante que celle du réseau fractal (Ghodoossi, 2005 ; Escher et al., 2008). Dans leurs travaux, Escher et al. (2008) ont comparé les caractéristiques hydro-thermiques des deux systèmes en considérant successivement, un débit volumique constant, une puissance dissipée constante et une perte de charge constante. Pour les deux premiers cas, ils ont montré que le réseau de canaux en parallèle, présente un coefficient de performance hydro-thermique (défini comme le rapport entre la puissance thermique et la puissance hydraulique) très important comparé à celui enregistré pour le réseau fractal, alors que ces deux réseaux présentent des coefficients du même ordre dans le troisième cas.

Par ailleurs, ce type de distributeur fractal implique des puissances énergétiques importantes en raison des faibles dimensions mises en jeu et de la longue distance que doit parcourir le fluide de l'entrée du distributeur à la sortie du canal.

Il convient de préciser que le problème de la maldistribution dans les réseaux parallèles ne peut être négligé dans ces études de comparaison et que le choix d'un système fractal peut être l'unique solution en cas d'opérations très sensibles aux variations des conditions opératoires qui peuvent se présenter dans un réseau parallèle non optimisé.

I.5.2.2. Réseaux de canaux parallèles

La compacité des systèmes microstructurés est une propriété géométrique très sollicitée en procédés, notamment lorsqu'il s'agit des applications embarquées. Les configurations planes présentent l'intérêt d'être facilement superposables pour une extrapolation à des échelles supérieures. A cet égard, les réseaux de canaux parallèles sont les configurations les plus utilisées pour les microprocédés employant par exemple des échangeurs de chaleur et de matière, des réacteurs catalytiques, etc. (Rebrov et al., 2003 ; Tonomura et al., 2004 ; Görke et al., 2005).

Figure I.3. *Canaux parallèles arrangés en configuration Z (à gauche) et en configuration U (à droite).*

Plusieurs façons de caractériser l'écoulement dans ces réseaux ont été évoquées dans la littérature. Dans certains travaux, les auteurs se sont basés sur des résultats expérimentaux pour développer ou améliorer des modèles semi empiriques, généralement établis pour des macro-écoulements. Certains ont développé des simulations fines et approfondies à l'aide de la MFN (Mécanique des Fluides Numérique) alors que d'autres ont juste développé des approches systémiques pour la caractérisation globale.

Bassiouny et Martin (1984) ont développé un modèle analytique pour calculer la distribution de vitesse et de pression dans les chambres d'entrée et de sortie des échangeurs, la distribution d'écoulements dans les canaux et la pression totale à travers l'échangeur. Dans une première partie de leurs travaux (Bassiouny et Martin, 1984a), ont examiné un arrangement de canaux en configuration U. Dans cette configuration, l'entrée et la sortie des conduites de distribution et de collecte sont du même coté, tandis que dans la deuxième partie (Bassiouny et Martin, 1984b) l'entrée de la configuration et sa sortie sont disposées de façon opposée pour former une configuration en Z (appelée aussi configuration en S).

En utilisant des coefficients hydrauliques expérimentalement estimés, l'écoulement d'un fluide en régime turbulent dans des configurations en Z et en U contenant des conduites cylindriques a été théoriquement analysé et expérimentalement validé par Pigford et al. (1983). Kikas (1996) a également comparé l'intérêt de ces deux types de système de distribution du fluide pour des récepteurs d'énergie solaire composés de mini-canaux. Il a été ainsi montré qu'en régime laminaire, la répartition des flux dans des configurations en Z est souvent plus uniforme que celle enregistrée dans des configurations en U.

Boersma et Sammes (1997) ont développé un modèle pour prévoir la distribution d'écoulement dans des piles à combustible. Le modèle analytique est basé sur un ensemble

d'équations décrivant l'écoulement du gaz dans un réseau de canaux où toutes les résistances hydrodynamiques à l'écoulement sont considérées dans le calcul. Ils ont trouvé que dans une grande partie du réseau, le flux circulant est différent de sa valeur moyenne dans le cas d'une répartition uniforme.

Tonomura et al. (2004) ont présenté un travail semblable pour concevoir des plaques microstructurées avec un minimum de maldistribution. Ils ont présenté une étude paramétrique basée sur des simulations numériques fines. Ils ont essayé d'optimiser la forme géométrique des conduites de distribution et de collecte et ont conclu que les conduites trapézoïdales avec une sortie large au niveau de la conduite de collecte, conduisent à une meilleure uniformité de l'écoulement. Kim et al. (2000) ont assimilé le réseau de canaux à un milieu poreux et ont simulé la distribution des flux à l'aide du modèle de Darcy reliant la perte de charge et la vitesse du flux dans le milieu poreux.

À l'aide d'un modèle de résistances électriques, la distribution des flux dans un réseau de canaux consécutifs définissant une configuration en Z a été analysée par Amador et al. (2004). Le comportement hydrodynamique de cette configuration a été comparé avec un double réseau fractal associé par un réseau de canaux en parallèle. En régime laminaire et en absence des pertes de charge singulières, le réseau fractal présente la distribution du fluide la plus uniforme alors que la configuration en Z doit être optimisée pour minimiser la maldistribution.

Rebrov et al. (2007) se sont intéressés dans leurs travaux à la conception d'un distributeur pour alimenter un ensemble de microcanaux en parallèle. Le distributeur lui-même est formé d'un cône suivi de deux réseaux de canaux en parallèle. Les deux réseaux de canaux sont perpendiculaires l'un par rapport à l'autre afin de former une grille de distribution. Ils ont analysé, à l'aide de simulations fines, l'influence des paramètres géométriques de la grille de distribution sur la distribution du fluide et ont montré que le nombre de sous-flux traversant cette grille doit être suffisamment élevé pour permettre de minimiser la maldistribution interne.

I.5.3. Contraintes de dimensionnement

Bien que parfois les expressions analytiques décrivant la conception géométrique de certaines structures présentent une validité mathématique illimitée, la réalité physique impose des contraintes particulières qui limitent plusieurs paramètres définissant la structure globale. On cite par exemple la limitation de l'émergence des échelles géométriques afin de répondre à des contraintes stériques ; le choix des différentes dimensions correspondant à chaque échelle, pour satisfaire des contraintes énergétiques (perte de charge, volume mort) ; ou encore des contraintes liées à la nature des phénomènes y opérant (transfert physique et /ou réactif) auxquelles on ajoute les contraintes techniques et économiques.

Dans la majorité des études de conception passées en revue, on montre l'intérêt de bien dimensionner les systèmes de distribution en optimisant tout paramètre géométrique capable d'améliorer la distribution interne des flux, tout en conservant la compacité des microsystèmes.

I.6. Impact de la maldistribution sur les performances des réseaux structurés

La présence d'une maldistribution dans un équipement microstructuré peut réduire l'efficacité du système global. Le degré d'impact de la maldistribution dépend de la nature de l'opération effectuée. En réaction, la maldistribution des flux agit directement sur la distribution des temps de séjours dans le réacteur ce qui affecte directement le rendement de la réaction et la sélectivité par rapport au produit désiré. Si en plus, le déroulement de la réaction nécessite une gestion appropriée du transfert thermique (comme c'est le cas des réactions endothermiques ou exothermiques), la présence de la maldistribution est souvent responsable de la création de points chauds qui peuvent conduire à des effets d'emballement du réacteur. La présence d'une maldistribution des flux thermiques implique aussi une sous-exploitation de la surface d'échange entre les fluides en circulation, ce qui peut conduire à des pertes thermiques dans l'échangeur.

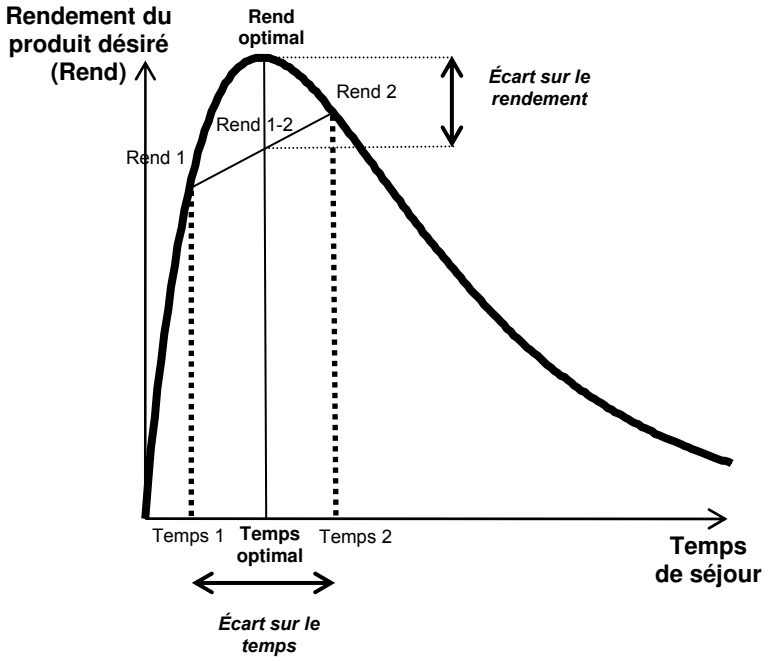


Figure I.4. *Représentation générale d'un rendement réactionnel en fonction du temps de séjour (Villermaux, 1993; Dietrich, 2009).*

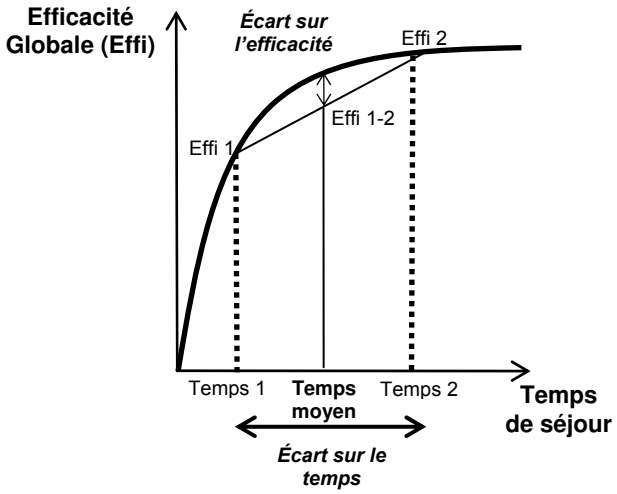


***Figure I.5**. Représentation générale d'une efficacité du transfert en fonction du temps de séjour (Villermaux, 1993; Dietrich, 2009).*

Les *Figures I.4* et *I.5* représentent, à tire d'exemple, l'évolution du rendement d'un produit désiré issus de deux réactions consécutives et l'efficacité caractéristique d'une opération de transfert thermique ou massique, en fonction de temps de séjour du fluide. En considérant deux temps de séjour (Temps 1 et Temps 2) s'écartant du temps de séjour optimal, la moyenne du rendement (ou de l'efficacité) pondérée par ces deux temps est inférieure à celle obtenue si les deux fluides circulaient avec le même temps de séjour.

De la même manière, la présence d'une distribution non-uniforme du fluide dans un réseau de microcanaux entraîne incontestablement un écart sur les performances désirées. Cependant, le degré d'impact de cette éventuelle maldistribution du fluide dans le réseau dépend de la nature de l'opération s'y déroulant. D'après les *Figures 1.4* et *I.5* il est possible de voir qu'à cause de l'allure des courbes, l'impact de la maldistribution du fluide sur la sélectivité d'une réaction est plus prononcé comparé à celui enregistré dans le cas d'un transfert thermique ou massique (l'écart au rendement optimal est plus important).

Dans la suite, on va passer en revue quelques exemples d'applications des réseaux structurés ainsi que les impacts de la maldistribution résultante de la conception géométrique, sur la performance de l'opération réalisée.

I.6.1. Réacteurs en réseau

L'influence de la maldistribution du fluide sur les performances du procédé a été souvent relevée pour les réacteurs conventionnels, comme les réacteurs à lit fluidisé, à lit fixe et les réacteurs à garnissage structuré (Wang, et al., 1998; Fitz et al., 1999 ; Lee et al., 2001). Dans les lits fluidisés par exemple, Lee et al. (2001) ont comparé les comportements du réacteur à lit fluidisé en essayant expérimentalement plusieurs distributeurs du fluide avec des particules

solides de différentes tailles. Ils ont conclu que la présence d'une maldistribution au niveau du liquide et /ou du gaz engendre une mauvaise expansion du lit fluidisé comparée à celle obtenue en absence de maldistribution. Dans le même contexte, les conséquences relatives à la présence d'une maldistribution peuvent aussi être dramatiques si par exemple des phénomènes sensibles sont mis en jeu dans le système microstructuré.

Quelques études de ces impacts dans les cas des microréacteurs ont été reportées dans la littérature (Heibel et al., 2001; Delsman et al., 2005). Heibel et al. (2001) ont étudié numériquement et expérimentalement la distribution des phases liquides et gazeuses dans un réacteur monolithique à film. Ils ont constaté que les courbes de distribution de temps de séjour sont beaucoup plus larges et dispersées en présence de la maldistribution des fluides.

Kikutani et al. (2002) ont étudié un réseau de plaques transparentes contenant chacune un canal individuel alimenté par deux courants liquides de produits. La réaction modèle utilisée est la formation d'un amide à partir d'une amine en solution aqueuse et d'acide chlorhydrique en solution organique. Le rendement enregistré pour une réaction se déroulant dans un canal individuel est de 83%. Ce rendement est indépendant de la valeur du débit traversant ce canal. La même réaction est réalisée dans un réseau de 10 plaques en verre, reliées par des conduites de distribution de diamètres très supérieurs au diamètre du canal. Ils ont trouvé que le rendement de la réaction diminue en augmentant le débit et peut baisser jusqu'à 70% à cause des problèmes de la maldistribution.

Les réactions de polymérisation radicalaire sont le plus souvent exothermiques et nécessitent un contrôle stricte de la température qui devient de plus en plus complexe en extrapolant l'échelle de procédé. L'extrapolation des microréacteurs pour la polymérisation de méthacrylate a été présentée par Iwasaki et al. (2006) à travers deux exemples d'opération du numbering-up. La première extrapolation est réalisée dans un dispositif employant des microréacteurs en tubes. L'unité globale contient 94 tubes en acier (0.5 mm de diamètre interne et 600 mm de longueur) avec un volume total de 9.6 ml. Le dispositif est divisé en deux segments où de l'huile chaude a été conduite dans le premier segment (500 mm) pour assurer la réaction de polymérisation, tandis que l'autre segment est alimenté par un fluide de refroidissement. A cause des problèmes de bouchage et de distribution, le rendement de la polymérisation de l'acrylate de butyle enregistré est plus faible comparé à celui noté pour un microcanal individuel.

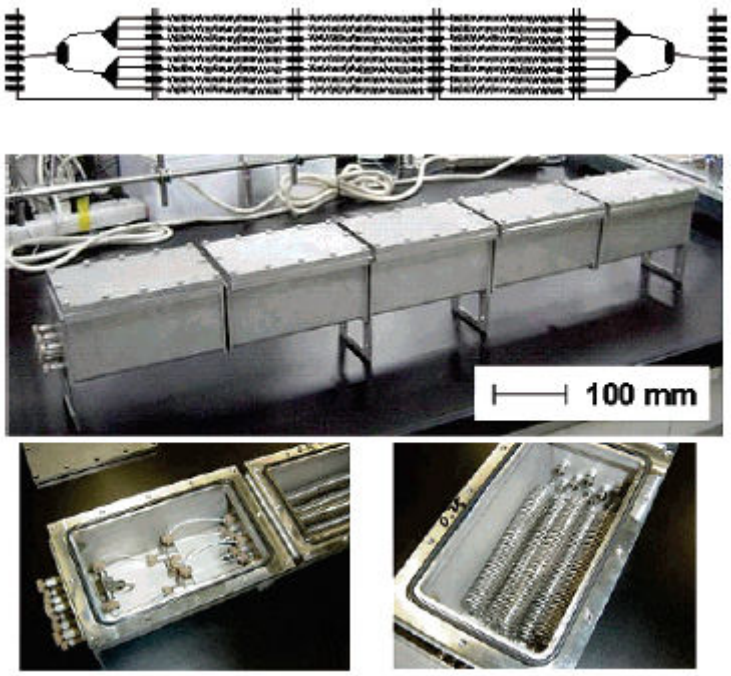


Figure I.5. *Dispositif d'extrapolation composé d'une succession d'étapes de huit microréacteurs pour la réaction de polymérisation (Iwasaki et al., 2006).*

La même réaction de polymérisation a été reconduite dans une deuxième unité d'extrapolation composée de cinq sections (chambres). La première section correspond à une arborescence pour la subdivision du fluide et le contrôle de la température des sous-flux formés. Ces sous-flux alimentent huit microcanaux dans les trois sections qui suivent et dans lesquelles la quantité de chaleur nécessaire pour la réaction de polymérisation est apportée. Dans la dernière section, tous les sous-flux sont recombinés et refroidis pour stopper la réaction de polymérisation (*Figure I.5*). Iwasaki et al. (2006) ont ainsi réussi, à l'aide de ce dispositif, à obtenir un rendement de polymérisation, un poids moléculaire et un indice de polydispersité similaires à ceux obtenus dans un canal individuel.

I.6.2. Echangeurs en réseau

L'impact de la maldistribution des flux sur les performances thermiques dépend aussi du type de l'opération thermique réalisée dans l'échangeur. Il a été montré que la maldistribution dans un échangeur à flux croisés peut conduire à une perte en efficacité plus prononcée comparée à celle observée dans les échangeurs à contre-courant (Lalot et al., 1999). Srihari et Das (2008) ont analysé le comportement thermique d'un échangeur à plaque multi-passe et ont observé que le comportement de l'échangeur en régime transitoire dépend essentiellement de la maldistribution du fluide et de son arrangement interne, du nombre de microcanaux présents dans l'échangeur en plus de la possibilité de mélange des différents courants de même fluide.

En plus des nombreuses applications embarquées des microéchangeurs, les configurations mettant en jeu des microsystèmes en série et en parallèle sont aussi employées pour des applications en énergie solaire (Kikas, 1996 ; Karwa et al., 2007). Karwa et al. (2007) ont évalué les performances thermohydrauliques d'un système d'échangeurs de chaleur solaires composé de plusieurs sous récepteurs arrangés en série et en parallèle à l'aide d'un modèle mathématique. Ils ont constaté que l'arrangement de ces systèmes de collecte en parallèle peut générer une efficacité thermique plus importante comparée au cas d'un arrangement en série.

I.6.3. Réseaux de canaux pour les piles à combustible

Les microsystèmes sont aussi destinés à des applications vertes, comme pour les piles à combustible constituées de plaques bipolaires dans lesquelles le fluide circule. Les plaques bipolaires constituent une partie conséquente du poids (60%) et du prix de la pile à combustible (30%) (Li et Sabir, 2005). Ce sont des plaques à base d'alliage métallique qui sont en contact avec la surface des électrodes. Des canaux sont gravés sur ces plaques pour permettre la distribution des gaz et l'évacuation des produits formés sur toute la surface de l'électrode (Stevens et al., Techniques de l'ingénieur).

Plusieurs conceptions de distributeurs de gaz constitués de canaux de différentes géométries sont utilisées pour alimenter les électrodes en gaz. Parmi ces conceptions, on trouve celles mettant en jeu un long canal continu en forme de serpentins et dans lequel la perte de charge entre l'entrée et la sortie du canal peut se révéler importante, ou encore des conceptions présentant un ensemble de canaux en série et en parallèle. Dans ces derniers cas, la conception et l'organisation des réseaux de canaux doivent assurer la distribution des réactifs à travers la surface de l'électrode tout en réduisant la perte de charge à travers le circuit global du fluide.

En plus de la maldistribution de fluide liée à la façon de structurer les plaques bipolaires, des problèmes de bouchage dans un seul canal comme dans un réseau de canaux peuvent se produire, généralement à cause de l'accumulation d'eau ou de matière issue de l'électrode. Il a été constaté que la pile à combustible peut devenir instable, après une longue période de fonctionnement, à cause de la distribution du gaz au niveau de la cathode et la formation d'eau difficilement évacuée (Li et Sabir, 2005). La formation de gouttes d'eau de différentes tailles et de répartition non homogène sur l'ensemble de la plaque bipolaire peut créer des chemins préférentiels pour le gaz, réduisant ainsi la surface active de la plaque, et par conséquent les performances de la pile entière.

I.7. Limites des systèmes microstructurés

I.7.1. Perte de charge dans les microsystèmes

Une conséquence directe de l'emploi des dimensions micrométriques est l'importante puissance mécanique dissipée qui en résulte. La réduction de la taille caractéristique du canal entraîne une augmentation importante de sa résistance à l'écoulement et donc de la perte de

charge correspondante (en régime laminaire et pour un canal cylindrique par exemple, la perte de charge est inversement proportionnelle au diamètre du canal élevée à la puissance quatre). Néanmoins, la réduction de la longueur du canal peut réduire la perte de charge résultante. Cette réduction reste insuffisante du fait que les impacts de ces paramètres géométriques sur la perte de charge ne sont pas du même ordre d'importance.

Ainsi, à cause des problèmes de perte de charge rencontrés à l'issue de l'utilisation des systèmes miniaturisés, leur utilisation peut être parfois limitée à la phase la plus sensible dans un procédé où leur intégration devient indispensable. Par exemple, la maîtrise de certaines réactions comme des réactions de polymérisation (Iwasaki et al., 2006) nécessite un contrôle très pointu de la température de la réaction. On est parfois amené à déclencher la réaction à un stade donné du procédé puis à l'arrêter dans un autre stade d'avancement. L'emploi de microsystèmes pour ces stades de réaction est très recommandé.

Yamamoto et al. (2007) ont examiné la décomposition de dioxyde de carbone dans un microréacteur à plasma, à l'aide des simulations numériques et en utilisant les données expérimentales sur les caractéristiques du plasma. Le réacteur élémentaire est modélisé par une conduite cylindrique où le plasma est présent uniquement dans une partie de la conduite. Il a été montré qu'un taux de conversion élevé du CO_2 est obtenu avec un faible diamètre du réacteur. Cependant, la génération du plasma nécessite un apport énergétique important à cause de la faible dimension du microréacteur. Ainsi, ils ont opté pour des canaux d'ordre millimétrique tout en recommandant le numbering-up pour ce type de réaction. En effet, la parallèlisation permet non seulement d'atteindre les capacités industrielles, mais aussi de diminuer la puissance dissipée.

I.7.2. Encrassement des microsystèmes et opérations de contrôle

Les dépôts de matière pendant le fonctionnement des microréacteurs peuvent être le résultat d'une réaction prématurée de précipitation ou de cristallisation non désirée, d'un déplacement de produit de solubilité, ou encore d'une modification physico-chimique des propriétés des fluides introduits et/ou résultants. A cet égard, il peut être indispensable de dimensionner les microstructures de façon à permettre une libre circulation des particules avec une importante marge de sécurité en cas d'agglomération de particules pour éviter le bouchage. Cependant, on risque ainsi de perdre l'intérêt de la microstructuration en augmentant la dimension caractéristique. Il convient aussi d'éviter les volumes morts dans les zones sensibles du réacteur et de prévoir des accès pour un nettoyage facile.

Tonomura et al. (2008) ont analysé numériquement et expérimentalement le numbering-up externe de quelques microréacteurs (4 et 8 microréacteurs en parallèle) et ont étudié l'impact d'un bouchage d'un ou de plusieurs de ces objets dans des positions différentes, sur le fonctionnement des autres objets non affectés par le bouchage. Ils ont tout d'abord comparé la réponse de la distribution des flux à la présence d'un bouchage en maintenant constant d'une part, le flux global à l'entrée et d'autre part, la perte de charge globale à travers le réseau

contenant ces objets. Il a été constaté que maintenir une perte de charge globale constante permettra de maintenir des distributions de débits similaires au cas du réseau sans bouchage au niveau de chaque microréacteur. Deux façons de contrôler la perte de charge ont été examinées, la première consiste à contrôler la variation de la perte de charge dans le réseau entier (incluant les microréacteurs en parallèle suivis d'un objet en série représentant une section où le fluide séjournera avant la sortie du réseau global). Dans ce cas, il a été constaté que la distribution des flux reste uniforme dans la mesure où la perte de charge au niveau du réseau d'objets parallèles reste prédominante dans la perte de charge globale incluant l'objet en série. Ainsi, cette perte de charge caractérisant le réseau d'objets parallèles a été régulée par la suite, de façon à maintenir une valeur constante.

Le contrôle de la distribution des flux a été appliqué sur des microéchangeurs reliés en parallèle. La robustesse de l'opération de contrôle de la perte de charge a été confirmée. Cependant, il a été constaté qu'en cas d'un dysfonctionnement dû au bouchage, le retour à la normale n'est pas immédiat. En effet, comme les transferts de chaleur conducto-convectifs sont intensifiés dans des petites dimensions, les transferts par radiation le sont également, ce qui risque de ralentir la transition vers le régime permanent.

Le fonctionnement des microréacteurs peut intégrer des capteurs, des actionneurs, des éléments de traitement du signal, etc. Des moyens de régulation mécaniques, pneumatiques, hydrauliques, piézoélectriques, électrostatiques ou électromagnétiques faisant suite aux progrès réalisés dans les techniques de contrôle sont actuellement possibles. Le contrôle des microréacteurs peut être effectué en considérant par exemple, des mesures en ligne de propriétés chimiques ou physiques comme des mesures optiques, colorimétriques, pH-métriques et conductimétriques, ou encore en intégrant des mesures thermiques (capteur de température, caméra infrarouge, etc.)

I.7.3. Durée de vie des microsystèmes

Tous les problèmes liés à l'encrassement des microstructures ainsi qu'à la difficulté de contrôle automatique interne limitent la durée de vie des microsystèmes ce qui limiterait leur utilisation sur le plan industriel. En effet, à cette échelle, les taux de pureté des produits et des solvants ne sont pas souvent suffisants pour assurer le bon déroulement du procédé. Une analyse de cycle de vie a été réalisée par Kralisch et Kreisel (2007), sur un procédé mettant en jeux des microréacteurs. Le but était de comparer les avantages écologiques qui en résultent en passant d'un procédé batch à un micro procédé continu. La synthèse de m-anisaldehyde à partir du m-bromoanisole est comparée pour les deux procédés. En réacteur semi-continu, cette réaction fortement exothermique doit être réalisée avec une grande précaution et nécessite une importante énergie de refroidissement. L'utilisation du microréacteur pour cette synthèse permet un fonctionnement isotherme. Le m-anisaldéhyde est produit à l'échelle du laboratoire (*10 kg*) et à l'échelle industrielle en mettant en parallèle *11* microréacteurs. Dans les deux échelles de production, un débit massique de *0,06 kg/h* par microréacteur est employé. A l'échelle du

laboratoire, une bonne maîtrise de la consommation énergétique et une augmentation du rendement réactionnel de près de *28 %* sont enregistrées en utilisant le microréacteur. Ils ont ainsi démontré dans leur analyse de cycle de vie, que l'utilisation des microréacteurs à l'échelle industrielle peut réduire significativement les impacts environnementaux causés par la production chimique comparée à l'utilisation des réacteurs semi-continus. Néanmoins, la durée de vie des microprocédés est nettement moins importante que celle du réacteur semi-continu (pour cet exemple : *10* ans sont prévus pour un réacteur semi continu et 1 an pour les microréacteurs).

Ces limitations doivent être surmontées avec le développement continu de ces microtechnologies. Le développement des techniques d'entretien a aussi depuis lors considérablement progressé pour permettre de pallier en partie ces difficultés.

I.8. Conclusion

Les différents aspects de la microstructuration et de l'extrapolation multi-échelle évoqués dans cette revue bibliographique, renseignent sur l'importance du dimensionnement des procédés microstructurés. L'extrapolation des microsystèmes nécessite l'assemblage d'objets en mobilisant des systèmes de connectique qui représentent eux-mêmes des nouvelles dimensions dans la chaîne d'extrapolation. Des microcanaux, mésocanaux et macrocanaux doivent être reliés de manière à assurer un fonctionnement identique pour chaque partie fonctionnelle du réseau global. Cette partie fonctionnelle qui peut correspondre à un microcanal ou un micro-objet en général, est le siège de plusieurs opérations physiques et/ ou chimiques.

Il est donc particulièrement important de bien cibler les principaux paramètres agissant sur le comportement de ces systèmes et de développer des méthodes de conception et de caractérisation autour de ces sujets afin de permettre un dimensionnement optimal des procédés microstructurés.

Chapitre II

Analyse hydrodynamique des structures multi-échelles

Le développement de nouveaux procédés passe nécessairement par une phase de conception préliminaire afin de cerner les paramètres qui influencent inévitablement les performances locales et globales du procédé. Une conception appropriée pour une maîtrise des flux internes au procédé est indispensable pour garantir les performances d'un réseau de microsystèmes.

Le présent chapitre présente une analyse hydrodynamique de certains réseaux multi-échelles sous un régime hydrodynamique laminaire caractéristique des micro-équipements. L'objectif principal est de permettre une sélection rapide d'une connectique adaptée entre les systèmes de distribution et de collecte et les microcanaux (micro-objets en général) afin d'analyser les possibilités d'extrapolation sans avoir recours à de très importants moyens de calcul. En effet, les performances globales en termes d'efficacité de transfert, de rendement et de sélectivité d'une réaction, de mélange et de séparation, etc., sont conditionnées, en grande partie, par la conception structurelle du système global.

Ainsi, plusieurs structurations de réseaux sont analysées et comparées sous un ensemble de contraintes, en se basant sur des critères hydrodynamiques importants, à savoir la maldistribution des flux et la puissance énergétique nécessaire pour l'écoulement.

II.1. Réseaux microstructurés et objectifs de l'étude

Les opérations de transfert physiques et/ou chimiques dans un objet microstructuré dépendent en grande partie du comportement hydrodynamique du fluide s'y écoulant. Aux petites échelles, ces comportements peuvent être grandement influencés par les paramètres géométriques définissant la structuration du réseau global. Cependant, le dimensionnement optimal d'un réseau quelconque siège d'un écoulement, doit souvent obéir à un ensemble de contraintes.

Plusieurs sortes de contraintes, d'ordre technique et/ou économique, peuvent être imposées. Des contraintes géométriques imposant un nombre fixe de canaux à relier, tout en respectant des exigences particulières comme par exemple les dimensions des canaux et des systèmes de distribution, sont souvent nécessaires pour assurer le bon déroulement des phénomènes physiques et/ou chimiques désirés. Le choix des dimensions et de la conception géométrique doit aussi intégrer les contraintes sur les puissances énergétiques nécessaires au fonctionnement.

Des contraintes liées à l'encombrement stérique ainsi qu'au volume global du fluide, impliquant à la fois le volume des canaux et le volume des distributeurs et des collecteurs, peuvent aussi limiter le choix de l'architecture globale du réseau.

II.1.1. Configuration générale des réseaux de canaux multi-échelles

On s'intéresse essentiellement à la conception des réseaux de microcanaux en parallèle connectés par des systèmes de distribution et de collecte. Les conduites de distribution forment à chaque fois avec les objets en parallèle et les conduites de collecte une configuration en Z qui,

d'après la revue bibliographique (*Chapitre I*), semble la mieux adaptée pour minimiser la maldistribution du fluide.

La configuration élémentaire regroupant les n_1 microcanaux en parallèle est appelée structure à deux échelles. Cette configuration élémentaire est reproduite n_2 fois en formant une structure à trois échelles. A nouveau, ce réseau de canaux à trois échelles est reproduit n_3 fois pour former une structure à quatre échelles (*Figure II.I.a*).

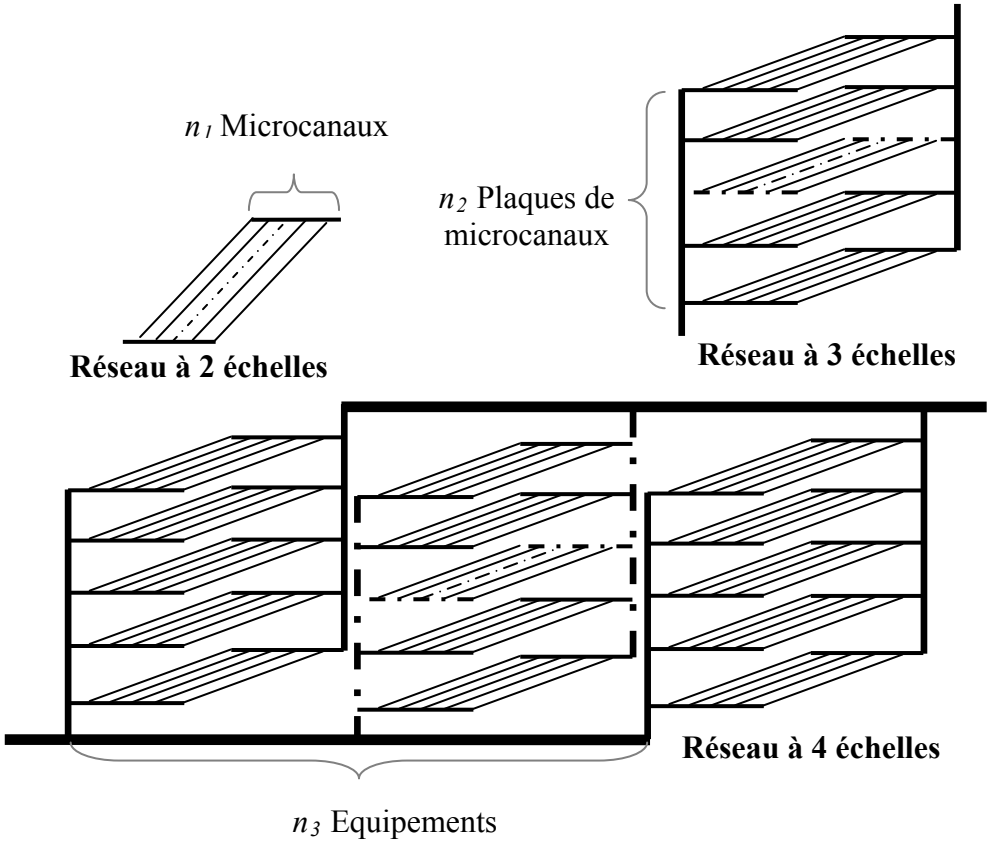


Figure II.1.a. *Conceptions des réseaux multi-échelles associant des canaux de différentes dimensions.*

Bien que cette conception puisse se poursuivre *m* fois, on se limite dans le cadre de cette étude à des réseaux à quatre échelles, ce qui devrait suffire pour simuler une large gamme de réseaux structurés. En effet, si par exemple la structure à deux échelles correspond à une plaque structurée, la structure à trois échelles correspondra à un empilement de ces plaques alors que la structure à quatre échelles correspondra à la parallélisation de l'équipement microstructuré résultant. La *Figure II.1.b* illustre un exemple du numbering-up de microéchangeurs microstructurés.

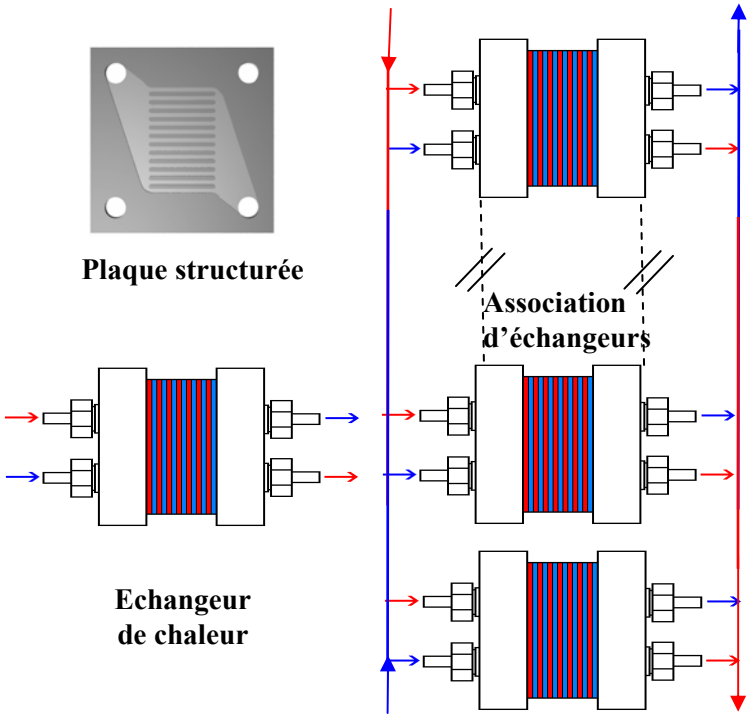


Figure II.1.b. *Exemple d'un réseau d'échangeurs de chaleur associés en parallèle.*

Cependant, le réseau à *m* échelles peut aussi simuler une structuration multi-échelles d'un objet dans un même plan, comme par exemple le cas d'une seule plaque sur laquelle sont gravés des microcanaux en formant le réseau à m échelles (plaques de refroidissement, plaques bipolaires, plaque pour réaction catalytique, etc.). Dans la présente partie, la conception géométrique de plusieurs réseaux de canaux est basée sur cette approche constructale multi-échelle.

Dans un but d'optimisation des performances globales des réseaux de canaux, un critère principal de conception consiste à optimiser l'uniformité des flux dans les microcanaux parallèles, de manière à ce que chaque canal opère sous les mêmes conditions de fonctionnement. D'autres critères de conception liés à la dissipation énergétique ainsi qu'à la compacité de l'équipement structuré sont aussi indispensables.

II.1.2. Objectifs de l'analyse hydrodynamique

L'analyse hydrodynamique de ces réseaux multi-échelles est nécessaire pour valider les performances de ces nouveaux outils de production et estimer leur faisabilité et leurs intérêts par rapport aux procédés existants.

En premier lieu, cette étude se focalise sur l'analyse du comportement des flux à travers des réseaux mettant en jeu deux échelles de diamètre (deux dimensions caractéristiques), i.e l'échelle caractérisant les microcanaux et l'échelle caractérisant le distributeur et le collecteur.

L'analyse hydrodynamique est réalisée en utilisant un modèle caractérisant un flux isotherme et laminaire et reliant linéairement la perte de charge au débit à travers chaque canal du réseau global. Dans la seconde partie de la présente analyse, le modèle hydrodynamique est adapté pour des réseaux multi-échelles afin de pouvoir analyser le comportement hydrodynamique de ces réseaux complexes. En effet, cette modélisation par une approche systémique permet une estimation rapide des performances de ce type de réseaux complexes et ce dans le but de sélectionner la conception appropriée sous les contraintes imposées.

II.2. Modélisation et analyse des réseaux de canaux parallèles

L'analyse hydrodynamique est effectuée par une approche systémique basée sur un modèle simplifié de perte de charge (le modèle de Poiseuille). L'utilisation d'un tel modèle résistif est beaucoup plus flexible comparé à l'utilisation d'une modélisation fine (MFN) qui nécessite des temps et des puissances de calcul énormes. Ainsi, plusieurs systèmes multi-échelles sont rapidement analysés et comparés selon des critères hydrodynamiques comme la maldistribution entre les débits, la résistance à l'écoulement et le volume effectif du réseau.

II.2.1. Structure élémentaire à deux échelles

Une configuration élémentaire est présentée sur la *Figure II.2,* elle peut correspondre à un ensemble de canaux reliés entre eux ou à une plaque sur laquelle sont gravés des microcanaux. Cette configuration élémentaire est composée d'un ensemble de canaux en parallèle reliés par une conduite de distribution alimentant les *n* canaux parallèles et une deuxième conduite de collecte symétrique à la première afin de rassembler les fluides sortant des différents canaux.

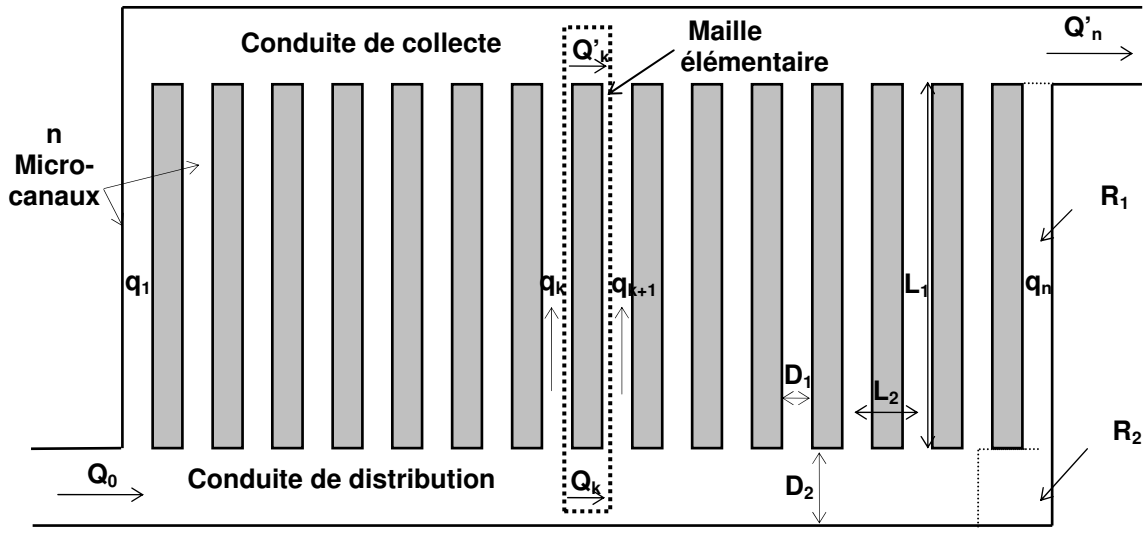


Figure II.2*. Configuration géométrique d'un réseau élémentaire comprenant n canaux en parallèle, une conduite de distribution et une conduite de collecte.*

La première échelle de la structure élémentaire correspond aux canaux cylindriques de diamètre D_1 et de longueur L_1, alors que la deuxième échelle inclut les deux conduites de distribution et de collecte caractérisées par un diamètre D_2. La longueur séparant les centres de deux canaux successifs est notée L_2.

Pour adapter la présente analyse à chaque valeur de n, les notations q_i, Q_i et Q_i' désignent respectivement, les débits volumiques dans le microcanal i, dans la portion du distributeur séparant deux canaux successifs et dans la portion équivalente au niveau de la conduite de collecte (*Figure II.2*). La compréhension de l'hydrodynamique de cette structure est indispensable pour pouvoir étudier des structures à plusieurs échelles.

II.2.2. Equations de conservation et bilans

Les écoulements dans l'ensemble de la structure sont soumis à des pertes de charge linéaires et singulières. En absence des singularités, le calcul de ce type de réseaux hydrauliques est similaire au calcul des réseaux électriques. Il est basé sur les lois de Kirchhoff qui correspondent ici aux bilans sur les débits en chaque noeud et aux bilans sur les pertes de charge dans chaque maille du circuit (Lallemand, 2001 ; Techniques de l'ingénieur). L'écriture des lois décrivant ces écoulements permet d'accéder aux débits volumiques dans le réseau de microcanaux.

Dans le but de simplifier l'analyse de la configuration élémentaire et se focaliser sur l'étude des réseaux multi-échelles, plusieurs hypothèses ont été adoptées comme suit :

- l'écoulement du fluide est considéré isotherme, laminaire et complètement établi à travers tous les canaux du réseau.
- la densité et la viscosité du fluide sont considérées uniformes à travers tout le réseau.
- les recirculations et les turbulences dans l'écoulement sont supposées absentes tout au long du réseau. Néanmoins, en raison du nombre élevé de ramifications dans ce type de structure, l'influence des singularités sur l'écoulement et la distribution du fluide sera discutée plus loin.

En considérant ces différentes hypothèses, l'écoulement du fluide à travers les microcanaux, le distributeur et le collecteur est exclusivement exposé aux pertes de charge linéaires. La loi de Poiseuille peut être alors utilisée pour modéliser l'écoulement dans l'ensemble du réseau. Cette loi relie linéairement la perte de charge à travers chaque canal et le débit le traversant. Ainsi, pour un canal de section cylindrique on peut écrire la loi de Poiseuille de la manière suivante:

$$\Delta P_{canal} = \frac{128.\mu.L_{canal}}{\pi.D_{canal}^4} Q_{canal} \qquad \text{(II.1)}$$

où ΔP_{canal} représente la perte de charge à travers un canal individuel qui peut représenter un microcanal, une conduite de distribution ou une conduite de collecte, μ est la viscosité dynamique

à température constante (20°C), L_{canal} est la longueur du canal, D_{canal} son diamètre et Q_{canal} le débit volumique le traversant.

Equations de conservation de masse

Aux nœuds constitués par les intersections des microcanaux avec le distributeur, on écrit les équations de conservation de la matière comme suit :

$$Q_{k-1} = Q_k + q_k \ , \ k = 1, n\text{-}1 \tag{II.2}$$

avec :

$$Q_{n-1} = q_n \tag{II.3}$$

Les équations du bilan de matière reliant les débits dans les distributeurs aux débits dans les collecteurs permettent d'écrire directement que :

$$Q_0 = Q_k + Q_k' \ , k = 1, n\text{-}1 \tag{II.4}$$

Ainsi, on pourra se passer des équations aux nœuds formés par les microcanaux et le collecteur du réseau afin de réduire la taille de la matrice de calcul.

Bilan de perte de charge

Le bilan de perte de charge dans la maille élémentaire d'une structure à deux échelles (*Figure II.2*) contenant une série de n canaux parallèles s'écrit comme suit :

$$R_1.q_k + R_2.Q'_k = R_1.q_{k+1} + R_2.Q_k \quad k = 1, n\text{-}1 \tag{II.5}$$

où R_1 représente la résistance à l'écoulement à travers les canaux de la première échelle :

$$R_1 = \frac{128.\mu.L_1}{\pi.D_1^{\,4}} \tag{II.6}$$

et R_2 la résistance à l'écoulement à travers les canaux de la deuxième échelle entre deux intersections avec les canaux de la première échelle:

$$R_2 = \frac{128.\mu.L_2}{\pi.D_2^{\,4}} \tag{II.7}$$

Des exemples de calcul de résistances hydrodynamiques pour certaines formes de canaux de section non circulaire sont reportés dans l'*Annexe A*.

En substituant chaque terme dans l'équation (II.5) par son expression déduite des équations (II.2), (II.3) et (II.4) on obtient les équations de maille suivantes :

$$(R_1 + R_2).Q_0 - 2(R_1 + R_2).Q_1 + R_1.Q_2 = 0 \text{ , } k = 1 \tag{II.8.1}$$

$$R_2.Q_0 + R_1.Q_{k-1} - 2(R_1 + R_2).Q_k + R_1.Q_{k+1} = 0 \text{ , } k = 2, n-2 \tag{II.8.2}$$

$$R_2.Q_0 + R_1.Q_{n-2} - 2(R_1 + R_2).Q_{n-1} = 0 \text{ , } k = n-1 \tag{II.8.3}$$

En normalisant par R_2Q_0, il vient :

$$1 + r_{1.2}.Q^*_{k-1} - 2(r_{1.2} + 1).Q^*_k + r_{1.2}.Q^*_{k+1} = 0 \text{ , } k=1,n-1 \tag{II.9}$$

avec :

$$Q^*_0 = 1 \text{ et } Q^*_n = 0 \tag{II.10}$$

où les Q^*_k représentent les débits normalisés par le débit total Q_0.

On introduit ainsi le rapport entre les résistances internes à la structure, qu'on définit dans ce cas comme suit :

$$r = r_{1.2} = \frac{R_1}{R_2} = \frac{L_1.D_2^4}{L_2.D_1^4} \tag{II.11}$$

Le système de *n-1* équations linéaires à *n-1* inconnues se résume dans l'expression matricielle suivante:

$$\begin{bmatrix} -2(r_{1.2}+1) & r_{1.2} & 0 & \cdots & 0 \\ r_{1.2} & -2(r_{1.2}+1) & \ddots & \ddots & \vdots \\ 0 & \ddots & -2(r_{1.2}+1) & \ddots & 0 \\ \vdots & \ddots & \ddots & -2(r_{1.2}+1) & r_{1.2} \\ 0 & \cdots & 0 & r_{1.2} & -2(r_{1.2}+1) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} Q^*_1 \\ Q^*_2 \\ \vdots \\ \vdots \\ Q^*_{n-1} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -(r_{1.2}+1) \\ -1 \\ \vdots \\ \vdots \\ -1 \end{bmatrix}$$

Cette matrice permet de calculer les débits normalisés dans la conduite de distribution. En utilisant l'équation (II.2), on détermine les débits q_k circulant dans les microcanaux en parallèle dans la première échelle. En effet, le système à *n-1* inconnues et *n-1* équations linéaires est présenté comme une matrice tridiagonale. En raison de la linéarité entre la perte de charge à travers le canal et le débit volumique le traversant, la distribution des débits normalisés ne dépend pas du débit à l'entrée du réseau. Le système d'équations linéaires dépend uniquement du nombre de canaux et du rapport de résistance $r_{1.2.}$

II.3. Critères du contrôle hydrodynamique

La performance hydrodynamique des systèmes multi-échelles est relative ici à une minimisation de la maldistribution entre les flux circulant à l'intérieur des microcanaux mis en parallèle, ainsi qu'une réduction de la perte de charge occasionnée par la conception géométrique.

II.3.1. La maldistribution du fluide

La distribution des flux à travers les différents canaux élémentaires est un des plus importants critères de conception examinés dans cette partie de l'étude. Selon le type d'opération réalisée et les contraintes de conception imposées, la non-uniformité des flux dans un réseau structuré peut avoir différents impacts sur les performances de ce dernier.

Du point de vue de la conception, plusieurs définitions de la maldistribution des flux peuvent être intéressantes à contrôler. Par exemple, si la maldistribution peut conduire à la création des points chauds et à l'emballement thermique du réacteur, la définition de la maldistribution doit inclure les différences extrêmes entre les flux internes régnants dans le réacteur, i.e. les valeurs minimales et maximales. La maldistribution des débits est définie dans ce cas comme suit:

$$Md[\%] = 100\,\frac{max(q) - min(q)}{max(q)} \tag{II.12}$$

où q représente le vecteur regroupant les flux à travers les microcanaux élémentaires de la première échelle. A contrario, si les variations des flux à travers le réseau global sont les facteurs déterminants (par exemple pour le contrôle des performances d'une réaction donnée), la maldistribution globale doit alors inclure l'écart type de l'ensemble des débits par rapport à la valeur moyenne par canal. La maldistribution est dans ce cas définie comme un écart type global tel que:

$$\sigma(q) = 100\,\frac{\sqrt{\frac{1}{n-1}\sum_{i=1}^{n}(q_i - \hat{q})^2}}{\hat{q}} \tag{II.13}$$

où *σ(q)* désigne l'écart type entre les débits volumiques constituant le vecteur *q*, normalisé par la valeur moyenne des débits notée ici comme $\hat{q}$. Cet écart type normalisé est aussi noté *Sd* sur les figures ci-après.

On s'intéresse dans cette partie à l'analyse du comportement hydrodynamique du fluide à travers différents réseaux de canaux. Par conséquent, la maldistribution *Md* définie dans l'équation (II.12) et représentant le cas le plus défavorable de la maldistribution est utilisée comme critère de comparaison des réseaux multi-canaux.

I.3.2. La perte de charge totale

Comme il a été précisé précédemment, la dissipation de l'énergie mécanique à travers ces réseaux est aussi un critère très important pour la conception des procédés notamment quand des équipements de faibles dimensions caractéristiques sont mis en jeu. Cette dissipation énergétique est souvent liée aux pertes de charge par frottement. La quantification de la perte de charge par frottement est basée sur le calcul de la résistance globale à l'écoulement le long du réseau multi-échelle. Cette résistance globale est un autre critère hydrodynamique à contrôler dans un réseau et ce au lieu de la puissance de pompage dont la valeur dépend du débit de fluide employé.

Il est important d'analyser les conséquences hydrodynamiques en terme de perte de charge dans les réseaux multi-échelles. En effet, les puissances énergétiques dissipées à travers ces objets microstructurés doivent être optimisées afin de minimiser les coûts énergétiques de fonctionnement. La résistance équivalente à l'ensemble de la structure peut être calculée, en adaptant le modèle d'écoulement résistif aux différents réseaux multi-canaux.

Tout d'abord, on calcule la perte de charge totale en choisissant un chemin que le fluide doit parcourir de l'entrée du distributeur jusqu'à la sortie du collecteur (*Figure II.2*). Dans ce cas précis, on choisit le dernier chemin possible dans la structure. La perte de charge (notée ΔP) est alors la somme de toutes les pertes de charge générées le long du chemin sélectionné :

$$\Delta p = R_{1.2}.Q_0 = 2R_2.Q_0 + \sum_{k=1}^{k=n-1} R_2.Q_k + R_1 q_n \qquad \text{(II.14)}$$

où $R_{1.2}$ représente la résistance globale de l'ensemble du réseau. Dans le cas théorique d'une distribution uniforme, les débits dans les distributeurs peuvent être calculés de la manière suivante :

$$Q_K = Q_0\left(1 - \frac{k}{n}\right) \;,\; k = 1, n \qquad \text{(II.15)}$$

Dans ce cas, le débit volumique initialement introduit est équiréparti sur les microcanaux en parallèle ($q_n = Q_0/n$), ce qu'on ne peut atteindre en réalité que si chaque microcanal est alimenté individuellement.
La résistance équivalente à l'ensemble des canaux est exprimée dans ce cas comme suit :

$$R_{1.2}^{uniforme} = 2R_2 + R_2\frac{(n-1)}{2} + R_1\frac{1}{n} \tag{II.16}$$

Dans le cas réel, le calcul de la résistance globale tient compte de la maldistribution des flux et s'exprime comme suit :

$$R_{1.2} = 2R_2 + R_2\frac{(n-1)}{2} + R_1\frac{q_n}{Q_0} \tag{II.17}$$

Il n'existe pas de solution analytique simple ne faisant intervenir que R_1, R_2, n et Q_0 car le débit q_n est obtenu par résolution d'un système de n équations linéaires. Lorsqu'il s'agit d'analyser des objets de forme irrégulières ou complexes, il sera intéressant de regarder la résistance globale $R_{1.2}$ normalisée par la résistance R_1.

A débit volumique constant, la puissance mécanique dissipée par frottement s'exprime pour une structure à deux échelles, comme suit:

$$P_t = R_{1.2}Q_0^2 \tag{II.18}$$

II.4. Distribution du fluide sur des structures à deux échelles

Sous les conditions hydrodynamiques de cette étude, la supposition d'un écoulement laminaire, complètement développé et en absence des singularités, fait que les critères hydrodynamiques sont fortement affectés par la forme géométrique de l'équipement microstructuré. Pour cette raison, les effets de la conception géométrique sur l'uniformité des flux et la perte de charge à travers ces systèmes microstructurés sont examinés en considérant les propriétés physiques de l'eau à 20°C. Ainsi, sous ces conditions, le système d'équations obtenu à partir des bilans de masse et de perte de charge ne dépend pas du débit initial alimentant le réseau. Il en résulte alors une même distribution des flux pour les différents débits imposés et la comparaison des résistances hydrodynamiques équivalentes (équation (II.17)) devient similaire à la comparaison des puissances de pompage pour un même débit (équation (II.18)).

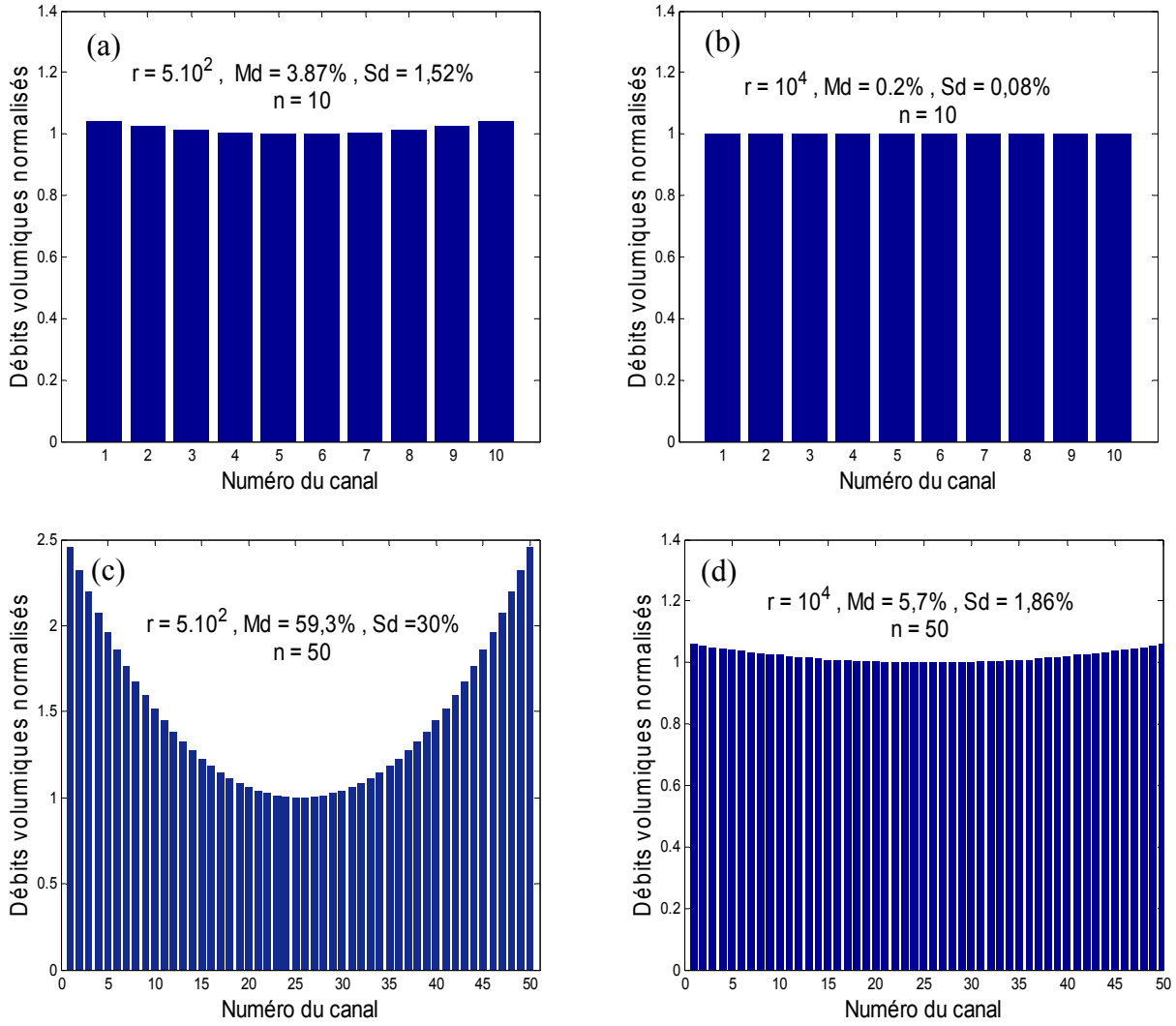


Figure II.3. *Distributions des débits normalisés par le débit au centre du réseau à deux échelles pour différentes valeurs de r et n.*

Les résultats illustrés sur la *F*igure *II.3* sont obtenus pour deux différents rapports de résistances r et deux séries de canaux en parallèle. Les rapports de résistances sont calculés en modifiant le rapport entre les diamètres D_2 et D_1. A titre indicatif, les réseaux élémentaires simulés dans cet exemple sont représentés par :

Deux géométries avec $n = 10$ et $n = 50$ dont les dimensions géométriques sont $D_1 = 10^{-3}m$, $L_1 = 20\ D_1$ et $L_2 = 2\ D_1$.

Il est possible de voir que pour tous les cas, la distribution du fluide sur les microcanaux est symétrique avec un minimum pour le microcanal central de la première échelle. L'impact du nombre de canaux sur la distribution du fluide apparaît clairement en comparant les *Figures II.3a* et *II.3c,* où on observe que pour un faible rapport r entre les deux échelles, la maldistribution du fluide devient élevée lorsqu'il s'agit de mettre en parallèle un nombre élevé de microcanaux.

En augmentant le rapport de résistances (*Figure II.3c* et *Figure II.3d*) il est possible de réduire cette maldistribution des débits à travers les canaux parallèles. Ce rapport de résistances hydrodynamiques internes est d'une grande importance pour le contrôle de l'équipartition des flux dans ce type de configurations. On peut très vite constater, que bien qu'une distribution uniforme ne peut être obtenue avec un nombre élevé de canaux, l'augmentation du rapport *r* permet de réduire considérablement l'écart à une équirépartion des débits.

II.4.1. Distribution symétrique avec un minimum au centre

La symétrie de la courbe de distribution est le résultat de la symétrie géométrique dans la configuration où le fluide s'écoule selon une loi de perte de charge linéaire. Tous les chemins que le fluide doit parcourir, sont considérés parallèles et géométriquement équivalents. En parcourant la géométrie de l'entrée à la sortie, le fluide est alors soumis à la même perte de charge globale quel que soit le chemin parcouru.

Comme le fluide subit une subdivision successive dans la conduite de distribution, les débits volumiques sont alors les plus importants dans les premières portions de cette conduite.
A l'inverse, dans la conduite de collecte, le débit du fluide subit une augmentation successive au fur et à mesure qu'il avance dans cette conduite, jusqu'à arriver à la sortie où tous les sous-débits sont cumulés. Ainsi, le fluide s'écoulant à travers le canal au centre du réseau, parcourt à la fois les premières portions de la conduite de distribution et les dernières portions de la conduite de collecte. Ceci signifie que les pertes de charge résultant du passage du fluide dans ces portions de la conduite de distribution et de collecte sont plus importantes pour ce chemin de passage que pour les autres chemins. Comme la perte de charge globale est équivalente à travers tous les passages parallèles possibles, il en résulte que le débit de fluide dans le canal du centre doit être le plus faible pour équilibrer le bilan de perte de charge globale. Pour les mêmes raisons, les débits à travers ces canaux des extrémités sont les plus importants comparés aux autres débits dans le reste des canaux.

Normalisation des débits

La représentation de la distribution des débits normalisés par le débit minimum au centre du réseau symétrique (*Figure II.3*) permet d'obtenir une distribution générale qui ne dépend pas du nombre total de canaux mis en réseau. La linéarité du modèle adopté et la symétrie par rapport au canal central dans lequel le débit est minimal, permettent de déduire la distribution de n'importe quel réseau contenant un nombre de canaux inférieur à celui étudié.

Des calculs de la maldistribution pour différentes valeurs de *n* et *r* sont reportés sur la *Figure II.4*. Cette représentation graphique permet de donner une première estimation de la maldistribution du fluide lors de la conception ou de la caractérisation d'un réseau de canaux à deux échelles. Les résultats trouvés sont représentatifs des réseaux de canaux de différentes sections géométriques présentant des rapports de résistances compris entre *100* et *50000*.

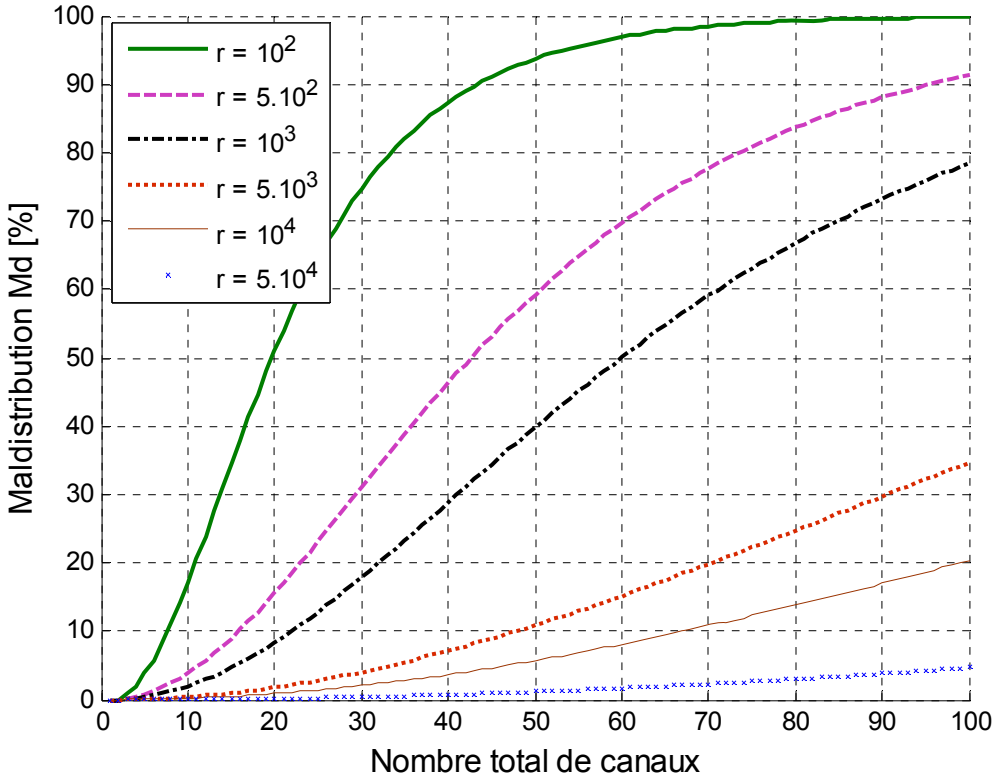


Figure II. 4. *Evolution de la maldistribution en fonction du nombre de canaux parallèle 'n' et pour différents rapports de résistances r.*

Il est clair que la maldistribution des flux augmente avec le nombre de canaux en parallèle. Cependant, cette augmentation est plus rapide pour les faibles rapports de résistances que pour les rapports élevés. Il est ainsi conseillé de travailler, dans la mesure de possible, avec des rapports r élevés pour réduire au maximum l'écart entre les débits et tendre vers une distribution uniforme des flux en parallèle.

Un ensemble d'études récentes a été consacré à l'analyse des plaques microstructurées à l'aide de simulations fines par mécanique des fluides numérique (MFN), en vue de la quantification de l'influence des conceptions géométriques sur l'équirépartition des flux (Tonomura et al., 2004 ; Amador et al., 2004 ; Griffini et al.,2007). Ces études numériques aboutissent souvent au fait que les impacts des paramètres définissant la conception géométrique vont dans le même sens que ce qu'on a présenté comme résultats dans cette première partie. En effet, toute variation liée aux dimensions des chambres de distribution et des microcanaux en parallèle (longueur, diamètre, épaisseur, espacement entre canaux, …) correspond ici à la variation d'un rapport de résistances hydrodynamiques internes. Cependant, les simulations fines réalisées sur ce type de géométries, ont révélé des distributions de fluides dépendantes du débit

aux nombres de Reynolds supérieurs à 10 (Amador et al., 2004), ce qui a permis de mettre en évidence l'impact des singularités sur la distribution du fluide.

Augmentation du rapport r et volume mort

Il convient de préciser que le fait d'augmenter les dimensions des chambres de distribution et de collecte augmente le volume mort à l'intérieur de la structure, élargit la distribution des temps de séjour et diminue ainsi l'efficacité de l'objet microstructuré.

En présence de grandes chambres de distribution et de collecte, les hypothèses utilisées pour le calcul des réseaux ne restent plus valables. En effet, un grand volume favorisera les phénomènes de recirculation du fluide. Le comportement du fluide dans ces chambres pourra être différent de celui prédit par le modèle. Ce volume mort a aussi un impact direct sur la distribution des temps de séjour ce qui peut engendrer une diminution de l'efficacité du réseau global si des phénomènes de transfert et de réaction sont mis en jeu. D'autre part, un volume important des systèmes de distribution et de collecte réduit la compacité du réseau et donc la miniaturisation du procédé associé.

Optimisation des chambres de distribution et de collecte

Toujours dans le but d'aboutir à des distributions uniformes de fluide en évitant des volumes morts, des travaux sur l'optimisation de la forme géométrique des chambres de distribution et de collecte ont montré que le volume de ces dernières peut être réduit à la dernière extrémité de la chambre de distribution et à la première extrémité de la chambre de collecte comme le montre la *Figure II.5* ci-après :

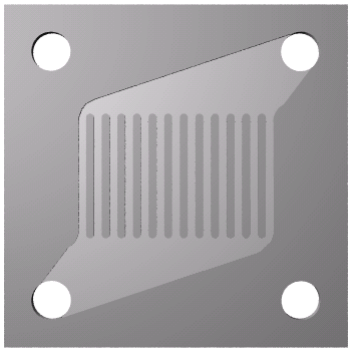


Figure II. 5 *: Exemple de plaque structurée avec des chambres de distribution et de collecte à volume réduit (IMM).*

Commenge et al. (2002) et Tonomura et al. (2004) ont montré par des simulations fines que les vitesses d'écoulement sont plus faibles aux environs des coudes formés par les chambres de distribution (et de collecte) et les microcanaux aux extrémités de la structure. Il y a donc formation de volumes morts dans ces régions. Il serait ainsi possible de soustraire ces parties de volumes morts et réduire ainsi le volume global des chambres de distribution et de collecte.

Il en sera vraisemblablement de même pour les géométries multi-échelles combinant un ensemble de modules élémentaires à deux échelles. En effet, à chaque fois qu'on doit relier des modules en parallèle, on peut s'attendre à ce que les nouvelles chambres de distribution et de collecte, appartenant aux échelles supérieures, doivent aussi être optimisées de la même manière que le module élémentaire l'a été (reproduction d'un même motif). Ce type d'optimisation n'est pas traité ici. Toutes les configurations étudiées présentent des chambres de géométries régulières, ce qui réduira par la suite la complexité de l'étude des réseaux multi-échelles.

II.4.2. Effets des singularités

Les pertes de charge singulières dans un système à deux échelles dépendent de la nature géométrique des singularités présentes (bifurcations, confluents, coudes, …) et du débit volumique introduit dans la configuration. Les coefficients de perte de charge singulière sont souvent déterminés expérimentalement.

Dans cette section du chapitre, les pertes de charge singulières déterminées à partir des équations décrivant les macro-écoulements sont rajoutées à la modélisation hydrodynamique de la structure élémentaire à deux échelles. La combinaison des équations de conservation de masse et de perte de charge, conduit aux différentes équations décrivant la perte de charge totale à travers chaque parcours dans le réseau.

En se référant à la maille de contrôle présentée dans la *Figure II.6*, on peut constater que les chemins reliant les points A et F en passant par le point C ou le point E, sont identiques du point de vue perte de charge. Il est ainsi possible d'écrire les bilans de perte de charge globale à travers chaque branche de la structure comme suit (voir *Annexe A* pour plus de détails sur le calcul des pertes de charge singulières):

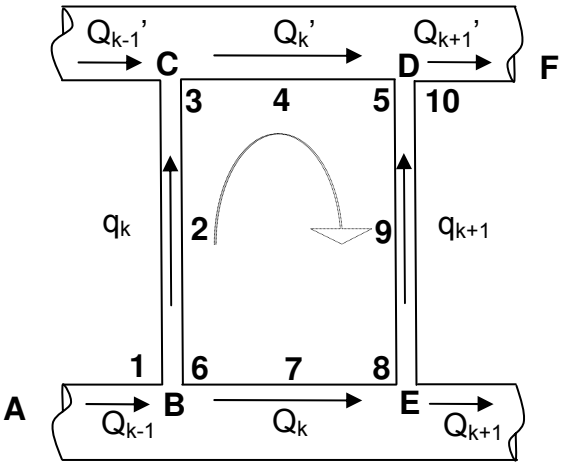


Figure II.6. *Schématisation d'une maille élémentaire comprenant les différentes pertes de charge linéaires et singulières.*

En passant par le premier chemin ABCDF, les différentes contributions des pertes de charge régulières et singulières sont formulées comme suit (Midoux ,1993):

1- une perte de charge singulière à travers la bifurcation:

$$\Delta P_1 = C/S_2.[(Q_{k-1}/S_2)^2 + (q_k/S_1)^2] \quad \text{(II.19.1)}$$

2- une perte de charge linéaire:

$$\Delta P_2 = R_1.q_k \quad \text{(II.19.2)}$$

3- une perte de charge singulière à travers le confluent:

$$\Delta P_3 = C.(Q_{k+1}' + q_{k+1})^2 \quad \text{(II.19.3)}$$

4- une perte de charge linéaire:

$$\Delta P_4 = R_2.Q'_k \quad \text{(II.19.4)}$$

5- une perte de charge singulière à travers le confluent:

$$\Delta P_5 = aC.[-Q_k'^2 + q_k^2(1/s^2-2) + q_kQ_k'] \quad \text{(II.19.5)}$$

Selon le deuxième chemin, parallèle au premier et passant par les points ABEDF, les différentes pertes de charge sont formulées comme suit :

6- une perte de charge singulière à travers la bifurcation :

$$\Delta P_6 = 0,4C.(Q_{k-1} - Q_k)^2 \quad \text{(II.19.6)}$$

7- une perte de charge linéaire :

$$\Delta P_7 = R_2Q_k \quad \text{(II.19.7)}$$

8- une perte de charge singulière à travers la bifurcation:

$$\Delta P_8 = C. [Q_k^2 + q_{k+1}^2s^2] \quad \text{(II.19.8)}$$

9- une perte de charge linéaire:

$$\Delta P_9 = R_1. q_{k+1} \quad \text{(II.19.9)}$$

10- une perte de charge singulière à travers le confluent:

$$\Delta P_{10} = C.[-Q_{k+1}'^2 + q_{k+1}^2(1/s^2-2) + q_{k+1}Q_{k+1}'] \quad \text{(II.19.10)}$$

A partir du bilan global sur les différentes pertes de charge, l'équation générale de maille correspondant à la *Figure II. 6* s'écrit de la manière suivante:

$$\Delta P_1+\Delta P_2 + \Delta P_3 + \Delta P_4 + \Delta P_5 = \Delta P_6 +\Delta P_7 + \Delta P_8 + \Delta P_9 + \Delta P_{10} \quad \text{(II.20)}$$

$$A_1 + A_2\, Q_{k-1} + A_3\, Q_{k-1}^2 + A_4\, Q_k + A_5\, Q_k^2 + A_6\, Q_{k-1}Q_k + A_7\, Q_{k+1} + A_8\, Q_{k+1}^2 + A_9\, Q_kQ_{k+1} = 0 \quad \text{(II.21)}$$

où k=*1,n-2*

$$A_1 = R_2\, Q_0 + CQ_0^2 \quad \text{(II.22.1)}$$
$$A_2 = [R_1 + aCQ_0] \quad \text{(II.22.2)}$$
$$A_3 = C\,[(1+s^2)-0.4 + a(1/s^2-2)] \quad \text{(II.22.3)}$$
$$A_4 = [2CQ_0 - 2(R_1+R_2)] \quad \text{(II.22.4)}$$
$$A_5 = C\,[a(1/s^2-2) + 1.6 - a(1/s^2-2) - (1+s^2)] \quad \text{(II.22.5)}$$
$$A_6 = C\,[2\,s^2 + a(2/s^2-5) + 0{,}8] \quad \text{(II.22.6)}$$
$$A_7 = [(a-4)CQ_0 + R_1] \quad \text{(II.22.7)}$$
$$A_8 = C\,[4 - a(1/s^2-2) - s^2] \quad \text{(II.22.8)}$$
$$A_9 = -\,C\,[4 + 2\,s^2 + a(2(1/s^2-5)] \quad \text{(II.22.9)}$$

où $s = S_2/S_1$; $a = exp(-0{,}5/s)$; $C = 0{,}5\rho\, S_2^2$,
où S_1 et S_2 représentent respectivement les sections droites des canaux cylindriques dans la première et la deuxième échelle du réseau global. *a* représente un coefficient empirique qui dépend de l'angle formé par les microcanaux et les systèmes de distribution. Dans le cas de canaux orthogonaux, ce coefficient est donné comme $a = \exp(-0{,}5/s)$. Pour déterminer les débits dans les microcanaux parallèles, le système d'équations non linéaires est résolu numériquement en utilisant la méthode de Newton-Raphson.

La *Figure II.7* illustre les effets des singularités sur la distribution des débits à différents nombres de Reynolds, pour l'exemple des données géométriques suivantes :
$D_1 = 0{,}003m$; $D_2 = 20\,D_1$; $L_1 = 20\,D_1$; $L_2 = 2\,D_1$.

Plusieurs configurations avec différents rapports de résistances *r* ont été testées en introduisant ces pertes de charges singulières dans la modélisation numérique. Cependant, l'effet des pertes de charge singulières a été principalement observé quand le rapport de diamètres entre les deux échelles devient très important.

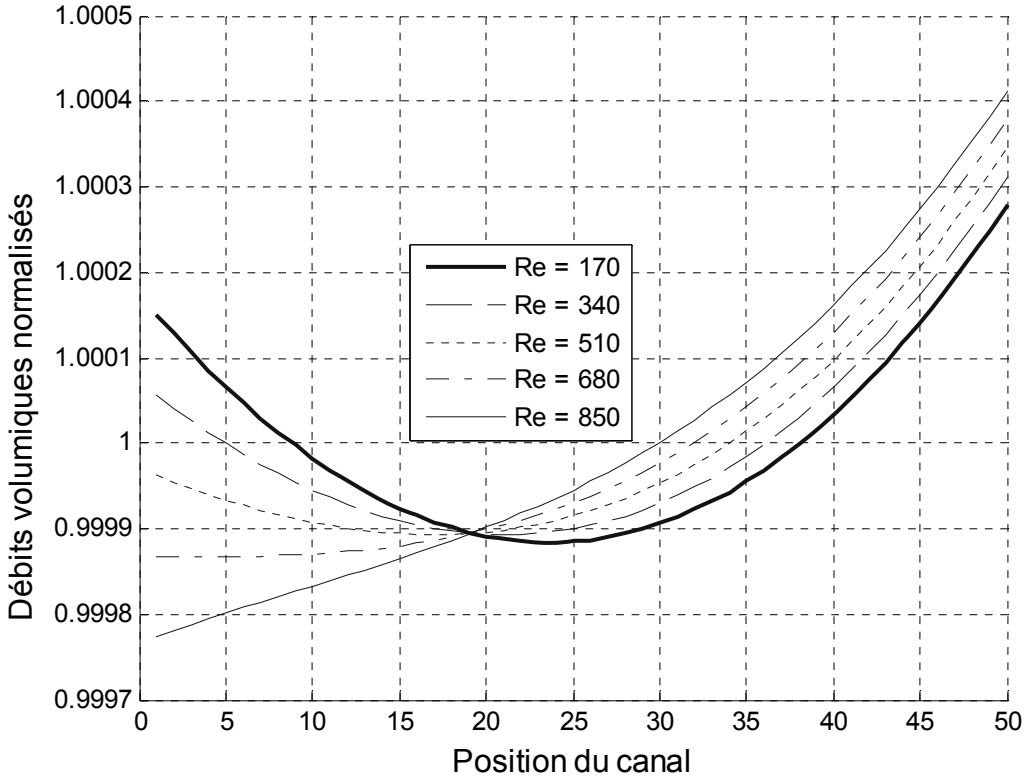


Figure II.7. *Distribution des débits pour différents nombres de Reynolds et en introduisant les effets des pertes de charge singulières.*

Ce résultat est expliqué par le fait qu'aux faibles rapports de résistances, l'effet des singularités est masqué par la forte maldistribution résultante dans ce cas (elles interviennent au second degré dans les équations de perte de charge). Par ailleurs, en négligeant les pertes de charge singulières, la distribution du fluide doit être uniforme sous les conditions géométriques imposées dans cet exemple. Cependant, l'introduction des singularités dans le modèle montre que la distribution du fluide n'est plus symétrique par rapport au centre du réseau et la maldistribution augmente légèrement *(Figure II.7)*.

Ce comportement peut être lié au fait que les corrélations décrivant les pertes de charge singulières à travers les bifurcations sont différentes de celles décrivant les confluents (Annexe A). La principale déformation de la distribution est observée dans les premiers canaux du réseau. En effet, dans cette partie de la structure, les débits dans les premières portions du distributeur sont les plus importants, ce qui fait que les effets des singularités correspondants sont les plus significatifs. Néanmoins, prendre en compte les pertes de charge singulières induit plusieurs incertitudes (sur les coefficients de perte de charge singulières) et alourdit la compréhension du comportement hydrodynamique de ces structures.

De plus, les corrélations de pertes de charge singulières illustrées dans *l'Annexe A*, correspondent à des écoulements en macro-échelle et nécessitent une vérification expérimentale en micro-échelle. Pour cette raison, et pour se focaliser sur l'analyse des structures multi-échelles plus complexes, les pertes de charge singulières seront négligées. Par conséquent, on s'intéresse exclusivement, dans ce qui suit, aux écoulements laminaires à faible nombre de Reynolds.

II.4.3. Perte de charge globale dans une configuration à deux échelles

On présente ici les résultats hydrodynamiques concernant les calculs de perte de charge dans un réseau à deux échelles. La *Figure II.8* présente l'évolution de la résistance hydrodynamique équivalente au réseau, en fonction du nombre de microcanaux parallèles et pour différents rapports de résistances internes. Pour généraliser le résultat à plusieurs réseaux d'objets parallèles, la résistance globale est normalisée par la résistance de l'objet parallélisé, à savoir le microcanal de la première échelle dans ce cas d'étude.

$$R_{1.2} = 2R_2 + R_2 \frac{(n-1)}{2} + R_1 \frac{q_n}{Q_0} \tag{II.30}$$

Pour un rapport de résistance constant, on peut constater que l'arrangement d'un nombre élevé de canaux en parallèle contribue à la diminution de la perte de charge totale du réseau. Ce comportement est observé jusqu'à un nombre déterminé de canaux à partir duquel la perte de charge augmente à nouveau (*Figure II.8*). En effet, dans la première partie de la courbe, la résistance à l'écoulement due aux distributeurs reste négligeable devant la résistance dans les microcanaux. La résistance globale du système est alors équivalente à une somme de résistances en parallèle et diminue en augmentant le nombre de canaux (comme l'indique le dernier terme de l'équation (II.17)). Au-delà d'un nombre optimal de canaux, les résistances hydrodynamiques des distributeurs et collecteurs deviennent importantes et contribuent à l'augmentation de la résistance globale. En effet, pour cette partie d'évolution de la résistance, le deuxième terme dans l'équation (II.17) décrivant les résistances correspondant au distributeur et au collecteur de la deuxième échelle devient significatif.

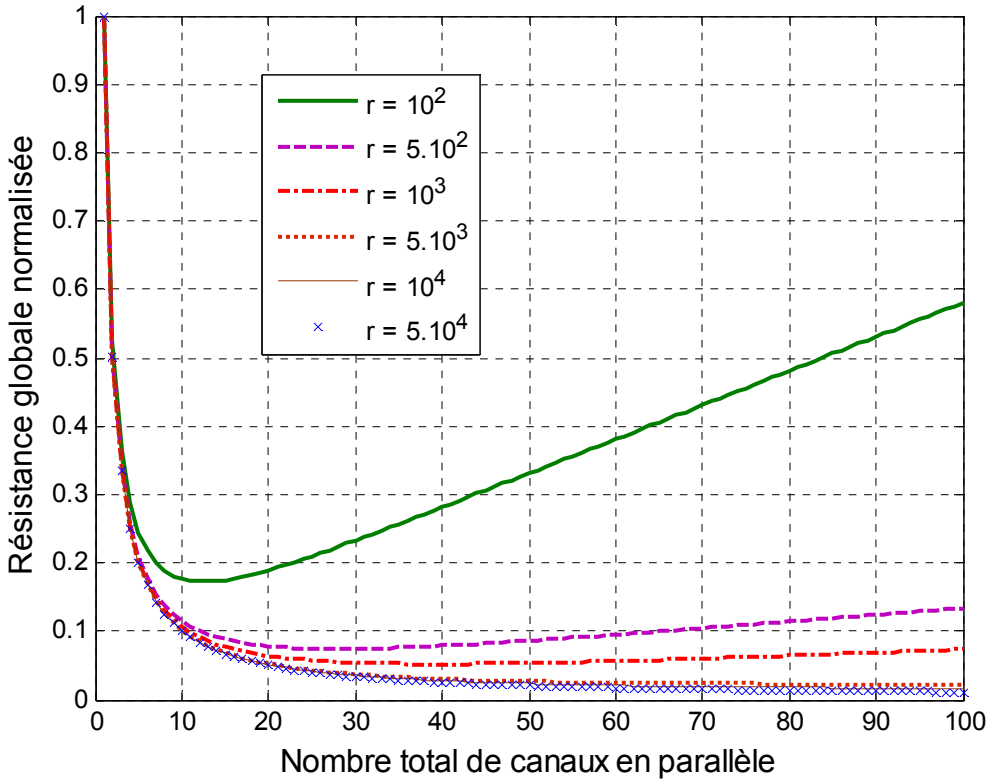


Figure II.8. *Evolution de la résistance hydrodynamique normalisée '$R_{1\text{-}2}$ /R_1' en fonction du nombre de canaux n en parallèle et pour différents rapports 'r'*

Le nombre de canaux donnant le minimum de résistance dépend fortement du rapport *'r'*. Plus ce dernier est faible, plus la perte de charge totale est importante et faible est le nombre de canaux qu'on pourra mettre en parallèle sans créer une perte de charge supplémentaire. Lorsque ce rapport devient important, la résistance globale du système tend vers un minimum très plat, ce qui signifie que les deux résistances se compensent entre elles bien que le nombre de canaux continue à augmenter.

Il est très important de bien choisir le nombre de canaux à mettre en parallèle pour une structure donnée. Ce nombre doit répondre d'une part aux contraintes liées à la distribution du fluide et d'autre part aux contraintes liées aux pertes énergétiques. Néanmoins, ces deux caractéristiques hydrodynamiques sont toutes les deux, dans les conditions de cette étude, en corrélation avec le rapport entre les résistances internes '*r*'.

Une conséquence directe de cette conception sous contraintes des réseaux à deux échelles est que, pour un nombre élevé de canaux, on ne peut pas arranger tous les canaux en parallèle sans créer une maldistribution importante et une perte de charge prohibitive. Les canaux doivent être séparés en plusieurs sous ensembles à optimiser selon les contraintes imposées. Cette conception de réseaux complexes est étudiée par la suite.

II.4.4. Distribution des puissances dissipées

Lorsqu'une particule parcourt une structure multi-échelle, plusieurs trajectoires possibles sont à considérer depuis l'entrée jusqu'à la sortie de cette structure. La puissance dissipée à travers ces parcours n'est cependant pas identique. On parle ainsi d'une distribution de puissances dissipées.

Considérons à titre d'exemple les structurations présentées au *Tableau II.1*, dans lesquelles 10 et 100 microcanaux parallèles sont successivement considérés avec des rapports de résistances $r = 10^2$, $r = 10^3$ et $r = 10^4$. Le calcul de la distribution de puissance met en jeu les débits circulant dans chaque branche de la structure. Le passage du fluide par le canal central engendre la puissance dissipée la plus élevée bien que le débit de fluide circulant dans le microcanal soit le plus faible. En effet, comme on l'a déjà expliqué précédemment (pour le cas d'une distribution avec un minimum au centre ; § II.4.1), les débits volumiques dans les branches de distribution et de collecte sont les plus importants à travers le chemin central de la structure. Il en résulte des puissances relativement élevées à travers ces branches, qu'on cumulera pour calculer la puissance globale de l'entrée à la sortie du réseau.

Tableau II.1. *Puissances dissipées et caractéristiques hydrodynamiques relatives aux différentes structurations analysées.*

r	10^2		10^3		10^4	
n	**10**	**100**	**10**	**100**	**10**	**100**
Md	7,49	97,61	0,79	53,50	0,08	9,06
P_m	$6{,}94.10^{-5}$	$3{,}06.10^{-4}$	$2{,}53.10^{-5}$	$3{,}89.10^{-5}$	$2{,}09.10^{-5}$	$4{,}30.10^{-5}$
Md_P	17,14	25,12	5,04	37,85	0,62	38,66
σ_P	7,04	7,19	1,97	12,93	0,24	13,57
P_t	$2{,}66.10^{-4}$	$5{,}07.10^{-4}$	$2{,}10.10^{-4}$	$7{,}40.10^{-5}$	$2{,}04.10^{-4}$	$2{,}59.10^{-4}$

P est le vecteur regroupant toutes les puissance P_i dissipée à travers les chemins parallèles i.

$$P_i = \sum_{k=0}^{k=i-1} R_2.Q_k^2 + R_1 q_i^2 + \sum_{k=i}^{k=n} R_2.Q_k'^2 \quad \text{pour } i = 1, n \tag{II.31}$$

$$Md_P = 100.\frac{Max(P) - Min(P)}{Max(P)} \tag{II.32}$$

P_m correspond à la moyenne de toutes les puissances P_i dissipées à travers tous les chemins parallèles dans la structure. Md_P correspond à la maldistribution calculée entre le maximum et le minimum des puissances dissipées, normalisée par le maximum de puissance dissipée enregistré.

Le σ_P correspond à l'écart type de ces puissances, normalisé par la puissance moyenne et P_t correspond à la puissance équivalente calculée en multipliant le débit total par la perte de charge totale (équation (II.18)).

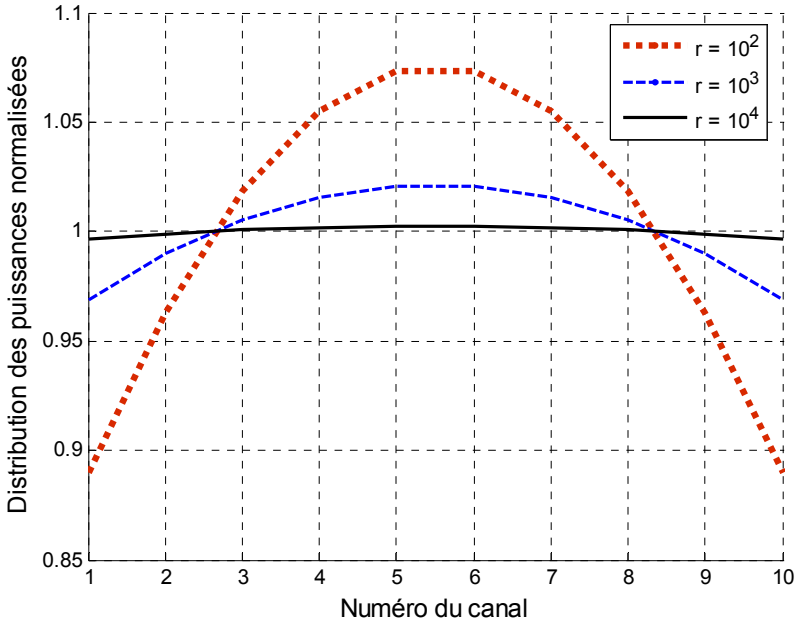


Figure II.9. *Distribution des puissances dissipées à travers tous les 10 chemins formant la configuration à deux échelles et pour les différents rapports r.*

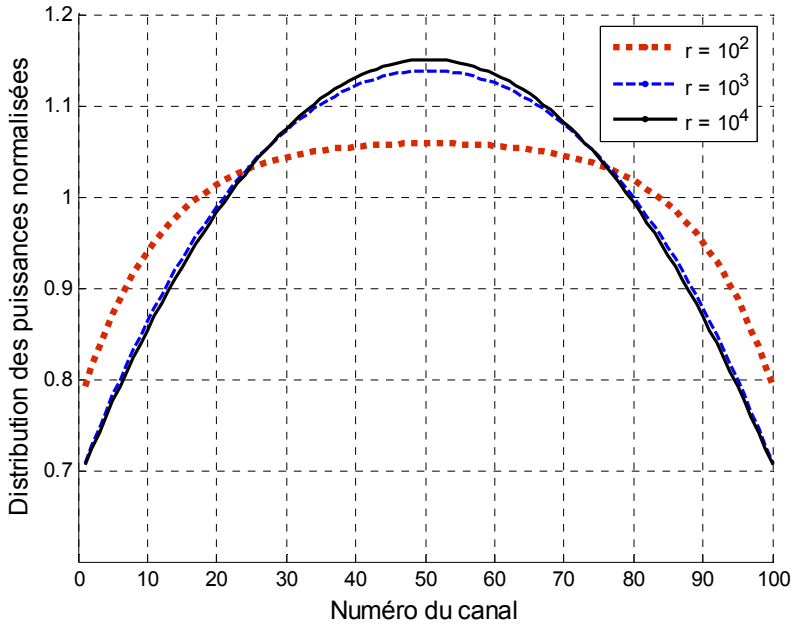


Figure II.10. *Distribution des puissances dissipées à travers tous les 100 chemins formant la configuration à deux échelles et pour les différents rapports r.*

Contrairement à ce que l'on peut s'attendre, la distribution de la puissance dissipée n'est pas en corrélation directe avec le rapport de résistance *r*. En d'autres termes, pour un nombre donné de canaux, le fait d'augmenter ce rapport *r* ne diminue pas forcément l'écart de puissance entre les différents chemins. La *Figure II.9* illustre la répartition de la puissance dissipée dans une structure à 10 microcanaux. Dans ce cas de figure, l'augmentation du rapport *r* réduit les écarts entre les puissances correspondantes à chaque chemin possible. Bien au contraire, dans la *Figure II.10,* le fait d'augmenter le rapport r augmente la dispersion des puissances dissipées par rapport à la valeur moyenne.

Le fait d'avoir une très forte maldistribution avec un *r = 100 et n =100* fait que les débits au milieu de la structure sont pratiquement nuls. Leur contribution est donc très faible au centre de la structure. Par conséquent, les niveaux de puissances dissipées ne sont pas très modifiés à travers ces chemins. Ceci se traduit par une allure presque plate au centre de la structure. Cependant, comme c'était le cas pour la perte de charge, les valeurs numériques des puissances dissipées restent toujours importantes aux faibles valeurs de r.

Comme conclusion préliminaire, l'analyse des configurations à deux échelles montre que le comportement du flux dépend principalement des paramètres géométriques du réseau et une conception optimale doit réconcilier une distribution uniforme avec une perte de charge minimale dans un système le plus compact possible.

II.5.Modélisation des réseaux multi-échelles

Un des enjeux majeurs des microréacteurs et des réacteurs microstructurés réside dans la possibilité d'augmenter la production et de traiter des débits pour des applications industrielles sans altérer les performances locales et globales des systèmes. Il devient indispensable de distribuer les flux à travers un nombre de canaux important. La technique souvent proposée est basée sur le numbering-up qui consiste à mettre en parallèle un nombre important d'objets dans un réseau. Une telle extrapolation du procédé à l'échelle industrielle fait souvent appel, d'une part, au numbering-up interne quand il s'agit de multiplier des micro-volumes dans un même objet, par exemple structurer une plaque avec des microcanaux dans le même plan. D'autre part, au numbering-up externe lorsqu'il s'agit de relier des micro-objets entre eux à des niveaux supérieurs, comme par exemple la parallélisation d'un ensemble de plaques superposées. Dans ce dernier cas, les canaux élémentaires sont groupés dans un réseau multi-échelles de n_1 canaux, gravés sur une plaque individuelle (réseau à deux échelles). Ensuite, les n_2 plaques sont à nouveau empilées pour construire un réacteur compact. Finalement, les n_3 réacteurs sont connectés dans un réseau pour former une macro-unité de production.

L'extrapolation par numbering-up n'est cependant pas aussi simple, car si le réseau de distribution n'est pas bien dimensionné, il peut y avoir une maldistribution importante des écoulements et les performances du réacteur global peuvent être assez éloignées de celles du

canal élémentaire. Par ailleurs, la perte de charge et le volume global du réseau peuvent être également des paramètres de design importants à considérer.

L'approche multi-échelle est donc utilisée ici comme une méthodologie de conception pour la structuration de ces réseaux complexes de canaux. Le but d'une telle approche est de construire d'une manière la plus optimale possible, un réseau arborescent capable de maintenir l'efficacité globale du procédé égale à l'efficacité du canal (ou de l'objet élémentaire en général). En effet, suite à l'analyse du premier volume élémentaire, les géométries des échelles supérieures sont successivement conçues, dans un ordre ascendant, par un assemblage parallèle des configurations de l'échelle inférieure. Au niveau de chaque échelle, la géométrie conçue peut être optimisée en considérant les différents critères hydrodynamiques présentés précédemment.

***Tableau II.2**. Exemple de contraintes géométriques imposées pour des configurations multi-échelles (Figure II.11).*

Nombre d'éléments parallèles à l'échelle i	***Diamètre du canal D_i[m]***	***Longueur du canal L_i[m]***
n_1	D_1	$L_1 = 50\, D_1$
n_2	$D_2 = 2\, D_1$	$L_2 = 2\, D_1$
n_3	$D_3 = 2\, D_2$	$L_3 = L_1 + D_2 + \xi$
n_4	$D_4 = 2\, D_3$	$L_4 = n_1.(L_2 + D_1) + L_2 + D_3 + \xi$

Le *Tableau II.2* regroupe les paramètres géométriques utilisés pour la conception des structures à trois et à quatre échelles. La variable ξ est un paramètre d'ajustement géométrique ajouté au différentes longueurs pour satisfaire la contrainte d'espacement entre les différents canaux dans le même plan ($\xi << D_1$).

Le volume effectif du fluide correspondant aux différentes géométries multi-échelles peut être estimé à partir de la relation récursive suivante :

$$V_{eff}(i) = n(i).[2v(i+1) + V_{eff}(i-1)]\ ,\ V_{eff}(0) = v(1) \qquad \text{(II.33)}$$

$$v(i) = \pi \frac{D_i^2 . L_i}{4} \quad i = 1, m; \qquad \text{(II.34)}$$

où m représente le nombre d'échelles et $v(i)$ et $n(i)$, respectivement le volume des canaux cylindriques et le nombre de canaux parallèles au niveau de chaque échelle i appartenant à la structure.

On précise que les conduites de distribution et de collecte comptent toutes les deux pour une seule échelle (i.e. la troisième et la quatrième échelle dans les réseaux à trois et à quatre échelles successivement).

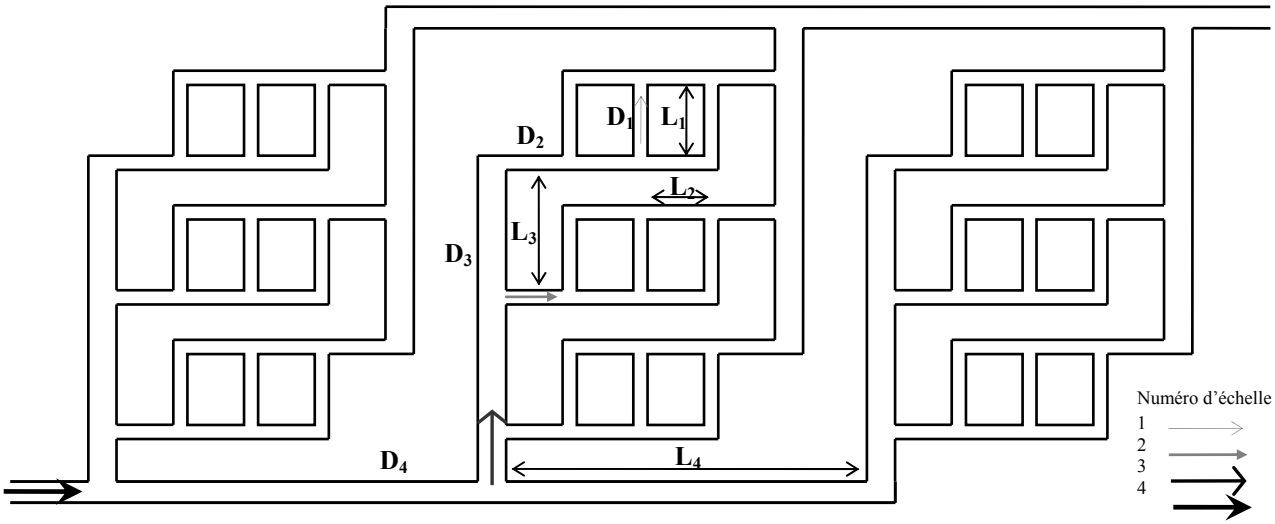


Figure II.11. *Exemple d'une configuration à quatre échelles: $[n_1, n_2, n_3] = [3, 3, 3]$.*

II.5.1. Approche d'analyse des réseaux multi-échelles

Pour étudier une variété de configurations de réseaux constitués par un nombre donné de canaux, une méthodologie de conception basée sur le calcul des résistances hydrodynamiques équivalentes est développée, en adaptant le modèle hydrodynamique présenté pour une structure à deux échelles à chaque nouvelle échelle dans le réseau.

Comme la résistance à l'écoulement dans la configuration à deux échelles ne dépend pas du débit initial Q_0 (elle dépend uniquement des propriétés physiques du fluide et des dimensions géométriques des canaux), une méthode basée sur le calcul successif des résistances équivalentes à chaque échelle du réseau global est développée. Les étapes de calcul sont les suivantes :

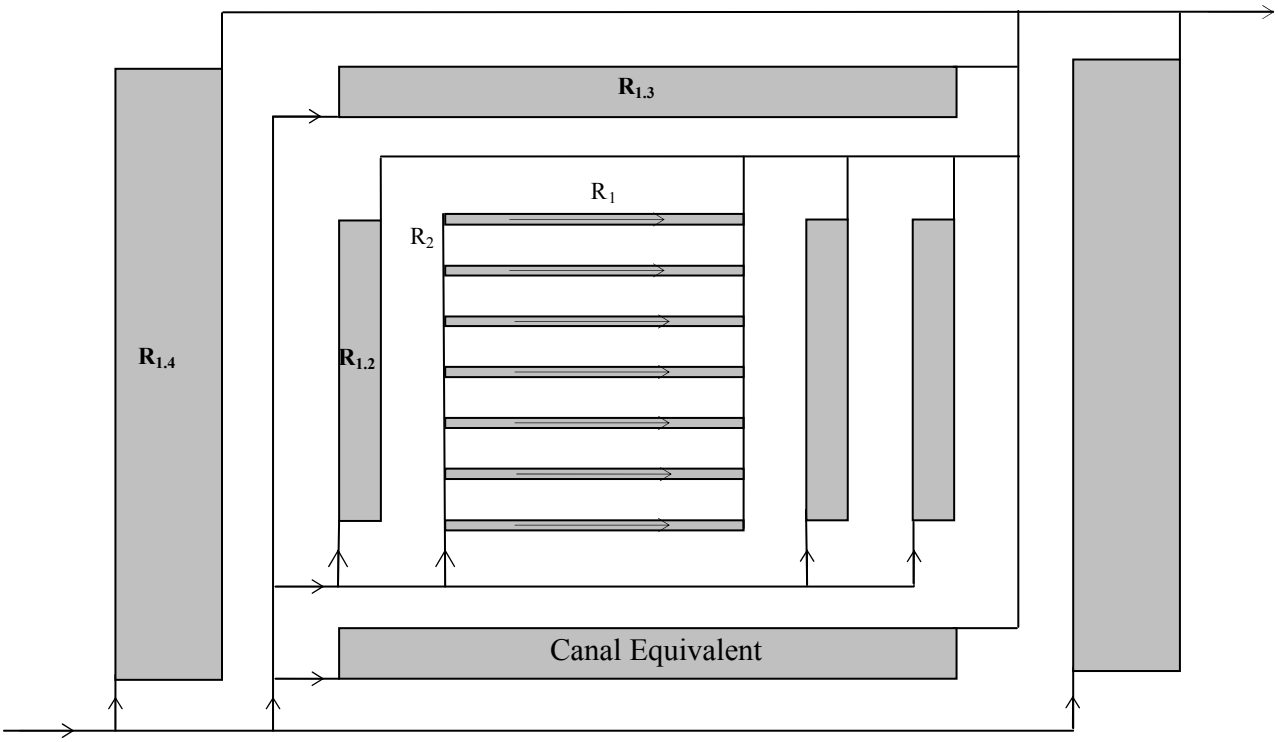


Figure II.12. *Schémas des résistances équivalentes utilisées pour le calcul des débits dans les réseaux multi-échelles*.

- A partir d'une configuration initiale (structure à deux échelles), on définit un canal équivalent présentant la même résistance ($R_{1.2}$) équivalente à la configuration initiale (équation (II.7)). Toutes les configurations élémentaires dans le même niveau du réseau sont remplacées par ce canal équivalent.

- En définissant ensuite de nouvelles conduites de distribution et de collecte pour distribuer le fluide à travers ces canaux équivalents, le problème mathématique devient similaire au problème initial décrivant la structure à deux échelles et peut être résolu de la même manière. La principale différence réside dans le fait que dans ce dernier cas, la résistance originale du canal élémentaire est remplacée par la résistance équivalente ($R_{1.2}$).
- La résolution de ce problème de distribution de nouveau permet de calculer un nouveau canal équivalent présentant la même résistance hydrodynamique que le réseau intermédiaire à trois échelles ($R_{1.3}$).
- Les mêmes étapes sont ainsi répétées récursivement jusqu'à atteindre la dernière échelle du réseau global composé de canaux équivalents (avec $R_{1.m-1}$ comme résistance du canal équivalent) et représentant la nouvelle structure à deux échelles.
- Finalement, pour un débit initial alimentant le réseau global, les sous débits issus de la subdivision du fluide à la dernière échelle peuvent être déterminés en premier. Ainsi, les autres

sous débits traversant les configurations inférieures sont successivement calculés. La *Figure II.12* schématise les étapes successives de la conception des réseaux muti-échelles analysés dans ce chapitre.

Au fur et à mesure qu'on avance dans le dimensionnement du réseau, on peut déterminer les caractéristiques hydrodynamiques correspondantes aux contraintes géométriques imposées. La maldistribution globale est fonction des maldistributions partielles estimées à chaque étape de conception:

$$Md_g = 1 - \prod_{i=1}^{i=m-1} (1 - Md_i) \tag{II.35}$$

avec Md_i qui représente la maldistribution estimée à partir de l'équation (II.12). Cependant, il convient de préciser que pour des maldistributions partielles comprises entre 0 et 1, la maldistribution globale est toujours plus élevée que la plus importante maldistribution partielle Md_i présente dans le réseau.

Il est aussi possible d'estimer la résistance hydrodynamique globale à partir de l'équation (II.17), en remplaçant la résistance R_1 par la résistance du canal équivalent $R_{1.i}$ calculée à chaque étape de conception multi-échelle (*Figure II.8*). Le *n(i)* est le nombre de ramifications attribué à l'échelle *i* et $q_n(i)$ représente le débit circulant dans le dernier élément en parallèle à l'échelle *i*.

$$R_{1.i} = 2R_i + R_i \frac{(n(i)-1)}{2} + R_{1.i-1} \frac{q_n(i)}{Q_0} \qquad i = 1, m \tag{II.36}$$

Tous ces critères hydrodynamiques globaux sont fonction des critères hydrodynamiques calculés aux échelles inférieures composant le réseau final.

II.5.2. Caractérisation hydrodynamique des structures multi-échelles

Dans cette section du chapitre, les différentes manières d'arranger un nombre fixe de canaux pour former des réseaux multi-échelles sont examinées. L'étude est réalisée pour une série de 216 microcanaux identiques, disposés dans des réseaux à trois et à quatre échelles successivement.

Les caractéristiques hydrodynamiques de chaque configuration, classées par ordre croissant de la maldistribution des débits sont listées dans les *Tableaux II.3* et *II.4*. Les caractéristiques de la géométrie à deux échelles sont aussi comparées à celles des configurations à trois et à quatre échelles et ce dans le but d'examiner l'impact de l'arrangement des canaux sur les performances hydrodynamiques obtenues. Toutes les configurations présentées dans les tableaux ci-après, sont conçues en maintenant le même rapport de résistance $r = r_{1.2} = 400$, en

raison des contraintes de conception indiquées dans le *Tableau II.2*. Ces contraintes de dimensionnement déterminent les valeurs des résistances correspondant aux chambres de distribution et de collecte à chaque échelle *i* du réseau global (R_2, R_3,...).

La répartition d'un grand nombre de canaux sur plusieurs échelles implique la génération de plusieurs configurations possibles. On précise que pour l'exemple examiné ici, on ne présente sur les tableaux qu'une partie des combinaisons possibles. Toutes les possibilités (*12* et *56* configurations pour un réseau à trois et à quatre échelles respectivement) peuvent être caractérisées en utilisant les *Figures II.4* et *II.8*.

Tableau II.3. *Caractéristiques hydrodynamiques d'un réseau à trois échelles contenant 216 canaux identiques, classées par ordre croissant de maldistribution: n_1 nombre de canaux élémentaires, n_2 nombre de réseaux élémentaires.*

$[n_1\text{-}n_2]$	Md [%]	V_{eff} [m^3]	$R_{1.3}/R_1$	$r_{1.2}$	$r_{2.3}$
[36-6]	44,62	$1,90.10^{-5}$	$3,52.10^{-2}$	400	21,84
[24-9]	54,41	$2,30.10^{-5}$	$3,73.10^{-2}$	400	20,58
[18-12]	66,21	$2,69.10^{-5}$	$4,28.10^{-2}$	400	21,60
[72-3]	68,05	$1,51.10^{-5}$	$5,54.10^{-2}$	400	31,52
[12-18]	81,60	$3,47.10^{-5}$	$5,57.10^{-2}$	400	26,00
[9-24]	88,99	$4,26.10^{-5}$	$6,93.10^{-2}$	400	31,61
[6- 36]	95,17	$5,83.10^{-5}$	$9,66.10^{-2}$	400	44,05

Les différentes géométries étudiées, bien qu'elles présentent un même nombre de canaux équivalents (*Tableau II.3* et *Tableau II.4*), induisent des résultats différents du point de vue hydrodynamique. Les principaux paramètres, qui influencent l'hydrodynamique de ces configurations, sont le rapport de résistances hydrodynamiques internes et le nombre de schémas parallèles à chaque échelle *i*. Cependant, ce rapport ne relie pas les résistances des canaux au niveau de deux échelles successives, mais relie la résistance équivalente aux réseaux de canaux dans une même échelle $R_{1.i}$ à la résistance de la conduite de distribution de l'échelle supérieure R_{i+1}.

Ainsi, le rapport $r_{1.2} = R_1/R_2$ est remplacé, pour des configurations à m échelles par le nouveau rapport $r_{i.i+1}$ ($r_{2.3}$, $r_{3.4}$ dans les *Tableaux II.*2 et *II.3*, respectivement).

$$r_{i.i+1} = \frac{R_{1.i}}{R_{i+1}} \qquad i = 1, m\text{-}1 \tag{II.37}$$

où $R_{1.i}$ représente la résistance équivalente au réseau de canaux défini de l'échelle *1* à l'échelle et R_{i+1} la résistance linéaire au niveau du canal de distribution de l'échelle supérieure. Comme toutes les échelles constituant le réseau global sont liées entre elles, il devient indispensable de contrôler chaque rapport de résistances internes à chaque étape de la construction géométrique.

L'impact de ce rapport de résistances est estimé en examinant les différents modes d'organisation des canaux présentés sur les *Tableaux II.3* et *II.4*. Il convient de préciser qu'à chaque étape de conception, les caractéristiques hydrodynamiques peuvent être relevées à partir des courbes caractéristiques d'une structure à deux échelles. En effet, les comportements du fluide illustrés sur les *Figures II.4* et *II.8*, sont aussi représentatifs du comportement hydrodynamique de n'importe quel réseau mettant en jeu deux échelles de résistances hydrodynamiques à l'écoulement. En effet, d'après les étapes de conception multi-échelle décrites dans la *Figure II.12*, on montre que le réseau multi-échelles est à chaque fois ramené à un réseau à deux échelles caractérisé par des résistances équivalentes. Par conséquent, tous les critères hydrodynamiques calculés pour une configuration élémentaire sont adaptés pour les configurations multi-échelles (*Figures II. 4 et II.8*).

***Tableau II.4**. Caractéristiques hydrodynamiques d'un réseau à quatre échelles contenant 216 canaux identiques, classées par ordre croissant de maldistribution: n_1 nombre de canaux élémentaires, n_2 nombre de réseaux à deux échelles, et n_3 nombre de réseaux à trois échelles.*

$[n_1\text{-}n_2\text{-}n_3]$	Md [%]	V_{eff} [m^3]	$R_{1.4}/R_1$	$r_{1.2}$	$r_{2.3}$	$r_{3.4}$
[6-3-12]	6,39	$8{,}01.10^{-5}$	$6{,}8.10^{-3}$	400	44,05	819,46
[6-4-9]	7,25	$7{,}47.10^{-5}$	$7{,}3.10^{-3}$	400	44,05	679,64
[9-4-6]	9,16	$5{,}71.10^{-5}$	$8{,}5.10^{-3}$	400	31,61	402,82
[6-6-6]	13,71	$6{,}92.10^{-5}$	$8{,}8.10^{-3}$	400	44,05	569,92
[18-6-2]	28,77	$3{,}54.10^{-5}$	$1{,}8.10^{-2}$	400	21,59	170,50
[6-12-3]	43,57	$6{,}38.10^{-5}$	$1{,}73.10^{-2}$	400	44,05	576,48
[6-18-2]	68,11	$6{,}19.10^{-5}$	$3{,}06.10^{-2}$	400	44,05	687,58

Il est montré dans le *Tableau II.3* que le rapport de résistances dans une structure à trois échelles ($r_{2.3}$) est très faible. Dans ce cas, l'augmentation du nombre de ramifications n_2 a un impact négatif sur les caractéristiques hydrodynamiques du réseau global.

En général, toutes les configurations impliquant un nombre élevé de canaux parallèles (n_2 dans les *Tableaux II.3* et *II.4)* au niveau de la troisième échelle où le $r_{2.3}$ est faible, induisent les

plus importantes maldistributions du fluide. Néanmoins, le nombre de microcanaux n_1 dans la première échelle doit être aussi contrôlé pour éviter d'engendrer une maldistribution importante à la première échelle.

L'analyse de la résistance hydrodynamique calculée pour les différentes géométries considérées montre que le fait de modifier le mode d'organisation des canaux dans la structure globale engendre des valeurs très différentes de la résistance globale. Cette différence est d'une part liée à la variation du volume du système de distribution et d'autre part à la façon de disposer les canaux dans un réseau arborescent. Ainsi, on remarque que les résistances hydrodynamiques les plus faibles sont obtenues avec les volumes effectifs les plus élevés, puisque dans ce cas le volume de la chambre de distribution est plus important. Néanmoins, on constate qu'il est possible d'obtenir des valeurs de résistance plus faibles à volume relativement moins élevé (en comparant par exemple les configurations [9-4-6] et [6-18-2]). Dans ce cas, l'effet de l'organisation des canaux sur la valeur de la résistance globale est très significatif.

II.5.3. Distribution des débits sur le réseau multi-échelle

La répartition du fluide sur les différentes branches d'un réseau multi-échelle se fait d'une manière successive. La présence de la maldistribution dans une échelle donnée va se répercuter sur les échelles inférieures. Ceci implique que la maldistribution globale dans un réseau, est supérieure à la plus importante maldistribution dans une échelle donnée. Cette constatation est confirmée en examinant l'expression analytique de la maldistribution globale établie pour les réseaux multi-échelles analysés ici (équation (II.35)).

Configuration optimisée

Les distributions des débits volumiques normalisés par la moyenne des débits correspondants, sont comparées pour le cas d'une configuration avec un minimum de maldistribution globale [6-3-12] dans le *Tableau II.4*) et le cas d'une configuration avec une maldistribution globale plus importante [6-18-2] dans le *Tableau II.4*).

Sur la *Figure II.13* est reportée la distribution du fluide sur les n_3 canaux parallèles de la troisième échelle (en haut et à gauche), à sa droite la distribution correspondante aux canaux parallèles de la deuxième échelle. La distribution du fluide dans les *216* microcanaux en parallèle de la première échelle est illustrée en bas de la figure.

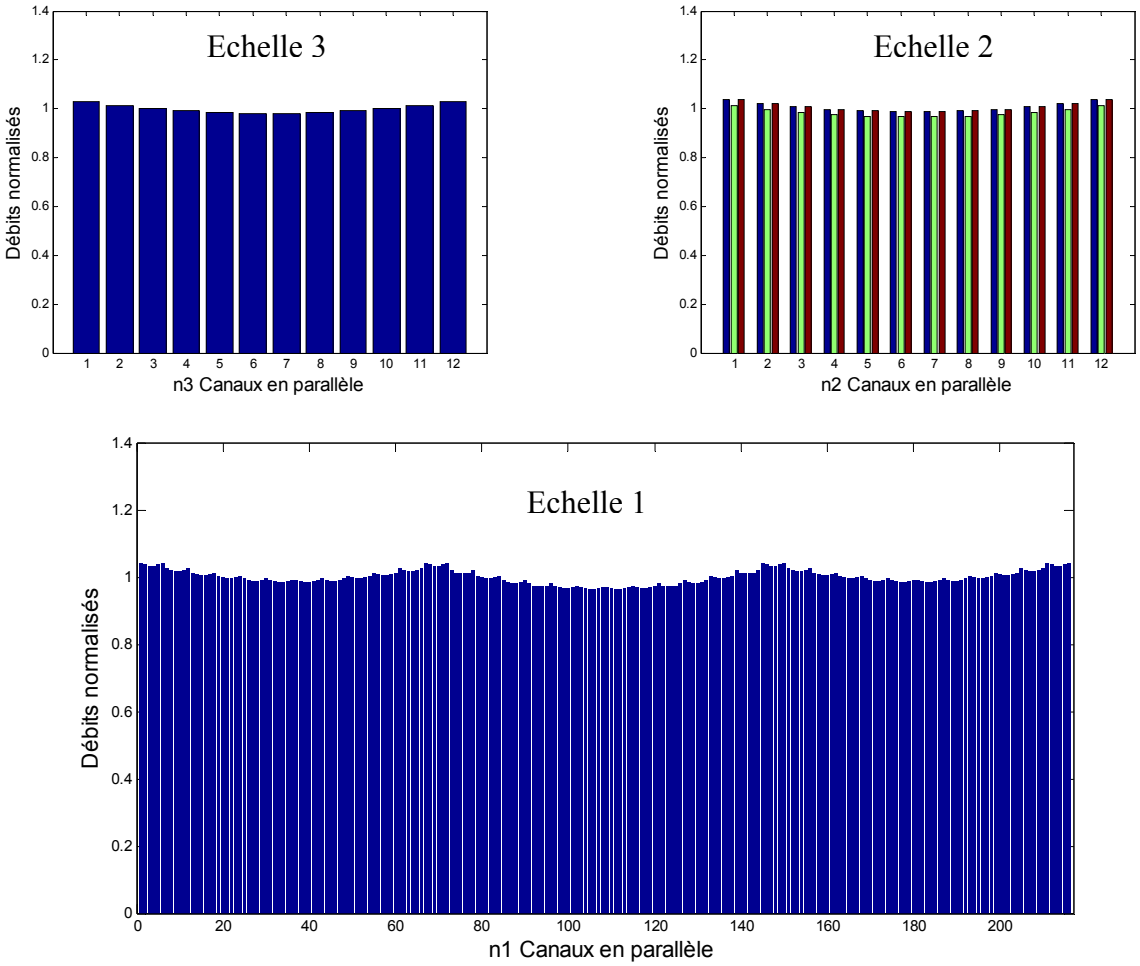


Figure II.13. *Distribution du fluide dans une structure à quatre échelles avec une répartition optimale* $[n_1\text{-}n_2\text{-}n_3] = [6\text{-}3\text{-}12]$.

Configuration non optimisée

Les distributions du fluide enregistrées dans le cas de la configuration [6-18-2] sont reportées sur la *Figure II.14* (avec la même disposition que sur la *Figure II.13*). Sur cet exemple de configuration maldistribuée, on peut clairement voir comment la maldistribution dans un niveau donné se répercute sur les niveaux inférieurs. Ainsi, sur la distribution du fluide dans les 216 microcanaux en parallèle (en bas des *Figures II.13* et *II.14*), on voit apparaître toutes les distributions partielles enregistrées dans les niveaux supérieurs du réseau multi-échelle.

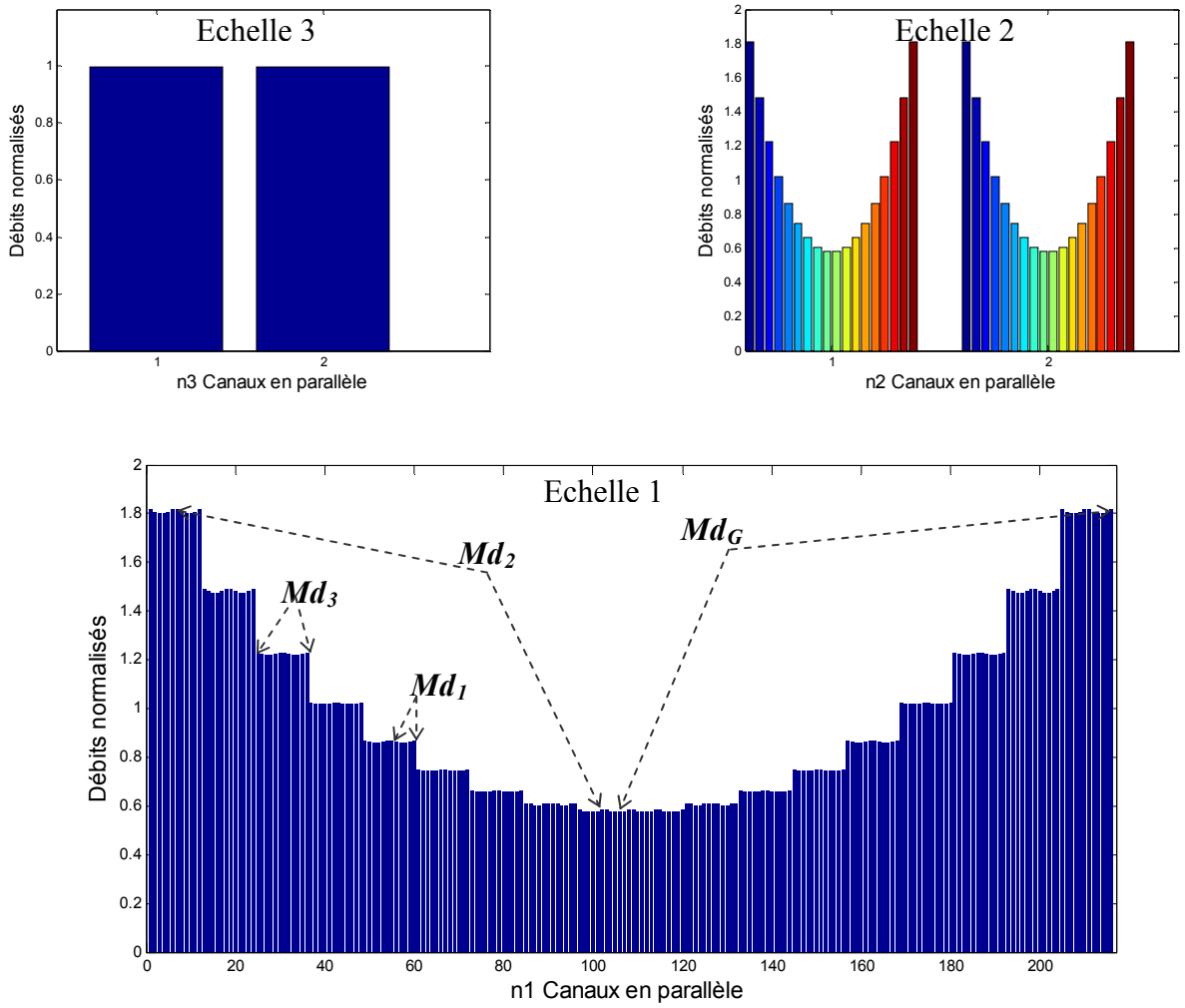


Figure II.14. *Distribution du fluide sur une structure à quatre échelles avec une répartition non optimale [n_1-n_2-n_3] = [6-18-2].*

La distribution des débits volumiques sur de telles structures multi-échelles (sous forme d'un double peigne) présente une similarité géométrique à tous les niveaux de conception. Cette architecture est responsable de la reproduction du même type de distribution du fluide sur les différentes branches parallèles du réseau global. Ce résultat est aussi lié en grande partie à la linéarité du modèle de perte de charge appliqué sur l'ensemble des canaux présents. Il en résulte alors des distributions symétriques avec un minimum au centre et ce au niveau de chaque série de branches en parallèle.

Cependant, cette propriété de similarité de la distribution est perdue dés l'introduction des pertes de charge singulières dans la modélisation. L'approche multi-échelle basée sur le calcul des résistances équivalentes n'est plus valable dans ce cas. Il est indispensable de résoudre tout le

système d'équations issu des bilans de matière sur chaque nœud ainsi que des bilans de pertes de charge sur chaque maille dans le réseau global.

II.5.4. Choix des réseaux multi-échelles

La première caractéristique des systèmes multi-échelles est observée en comparant la maldistribution du fluide pour les géométries présentées dans les *Tableaux II.3* et *II.4*.

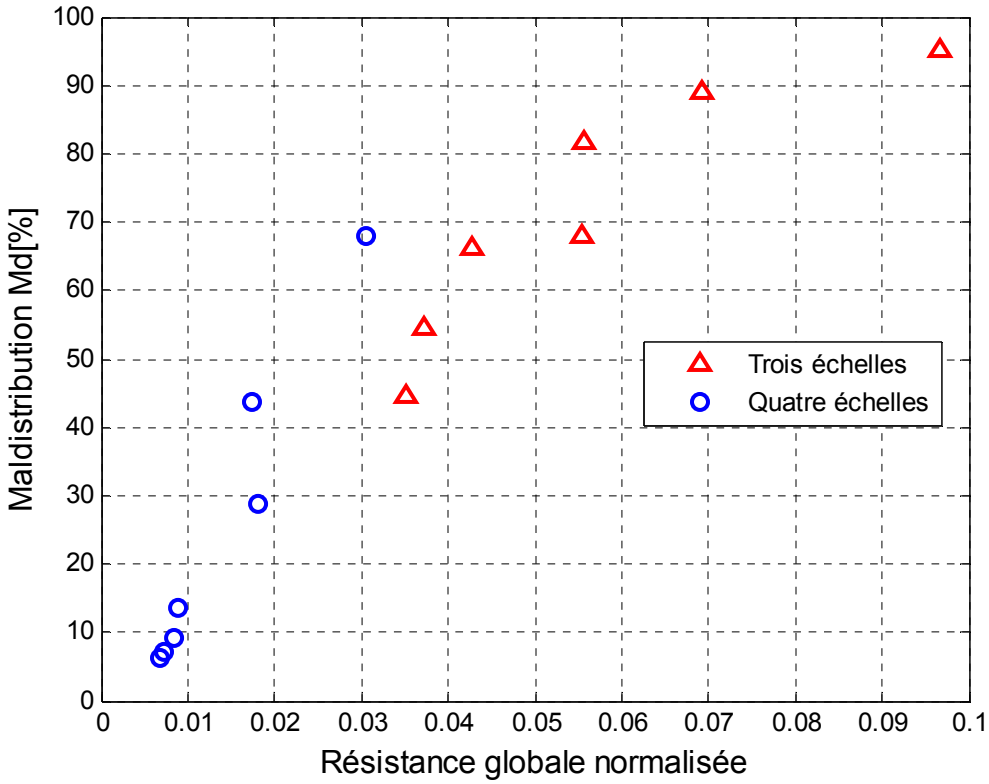


Figure II.15. *Maldistribution du fluide en fonction de la résistance globale normalisée '$R_{1\text{-}i}/R_1$', pour les différentes configurations classées dans les Tableaux II.3 et II. 4.*

On s'intéresse généralement aux caractéristiques globales de l'équipement microstructuré auxquelles on peut facilement accéder (rendement global, perte de charge globale, etc.). Il est difficile de réaliser une mesure directe de la maldistribution du fluide lorsqu'il s'agit d'un équipement emboîté. La présence d'une maldistribution du fluide est dans ce cas associée aux écarts des mesures globales par rapport aux mesures enregistrées dans le cas d'un fonctionnement optimal.

La *Figure II.15* associe les estimations de la maldistribution du fluide aux estimations des pertes de charge correspondant aux configurations à trois et à quatre échelles successivement. Elle montre que les faibles valeurs de la maldistribution correspondent généralement aux faibles valeurs de la résistance hydrodynamique équivalente. En effet, la mesure de la perte de charge

globale à travers le système microstructuré multi-échelle peut donner une idée générale sur la non-uniformité interne des flux. La figure illustre bien que la majorité des configurations à trois échelles regroupant les 216 canaux révèlent une maldistribution supérieure à 44%, alors que plusieurs configurations à quatre échelles présentent des maldistributions inférieures à 7%.

En effet, l'analyse de la géométrie élémentaire montre que l'arrangement des canaux en parallèle dans un réseau à deux échelles induit une résistance équivalente qui décroît lorsque le nombre de canaux parallèle n_1 croît. Cependant, la transition d'un réseau à deux échelles vers un réseau à trois échelles, résulte en un rapport de résistance ($r_{2.3}$) qui diminue à cause de la résistance équivalente ($R_{1.2}$) déjà réduite dans le réseau inférieur à deux échelles. Ce résultat peut être illustré en comparant par exemple les configurations [6-6-6] et [18-6-2].

Dans la configuration [18-6-2], le rapport $r_{2.3}$ = 21,59 résultant de la première parallélisation ($n_1 = 18$) est relativement petit par rapport à celui résultant de la parallélisation de 6 microcanaux dans la configuration [6-6-6] ($r_{2.3}$ = 44,05). Il en résulte que la seconde parallélisation des (*6 x 18*) microcanaux implique une maldistribution plus élevée que celle obtenue en parallélisant les (*6 x 6*) microcanaux.

II.5.5. Comparaison des réseaux multi-échelles à volume fixe

La comparaison entre les différentes géométries générées présentées dans les *Tableaux II.3* et *II.4*, montre que les configurations à quatre échelles ont l'avantage de présenter une faible maldistribution et une faible perte de charge. Néanmoins, le volume total du système de distribution et de collecte est souvent important comparé à celui obtenu en arrangeant les canaux sur trois échelles. Le *Tableau II.5* compare les caractéristiques hydrodynamiques de structures à deux, à trois et à quatre échelles, successivement. Ces configurations présentent 216 canaux identiques et un volume global similaire.

***Tableau II.5**: Comparaison des géométries comprenant un nombre identique de canaux avec un volume effectif global similaire.*

Nombre d'échelles	*Configuration*	$r_{1.2}$	$r_{2.3}$	$r_{3.4}$	*Md [%]*	V_{eff} [m^3]	$R_{1.i}/R_1$
Deux échelles	**[216-1-1]**	65610	-	-	8,24	$5{,}75.10^{-5}$	$5{,}70.10^{-3}$
Trois échelles	**[6-36-1]**	400	44,05	-	95,17	$5{,}83.10^{-5}$	$9{,}66.10^{-2}$
Quatre échelles	**[9-4-6]**	400	31,61	402,82	9,16	$5{,}71.10^{-5}$	$8{,}50.10^{-3}$

Il est possible de voir que pour atteindre une maldistribution d'environ 8% en utilisant une configuration à deux échelles, le rapport de résistances nécessaire doit être très élevé comparé à celui des configurations à trois et à quatre échelles. Ceci peut engendrer un volume mort au niveau des conduites de distribution et de collecte. Cependant, la configuration à quatre échelles

présente des caractéristiques hydrodynamiques plus intéressantes que celles correspondantes à la configuration à trois échelles. On peut ainsi constater que le volume global du réseau n'est pas une condition suffisante pour avoir des performances hydrodynamiques optimales. La répartition des canaux sur les différentes échelles reste toujours le facteur important à contrôler pour le fonctionnement optimal de ces structures multi-échelles.

Les résultats présentés dans cette section, démontrent la complexité des réseaux multi-échelles en fonction des différents paramètres à considérer. Quelques lignes directrices peuvent néanmoins être déduites pour concevoir des géométries appropriées : elle sont présentées dans la section ci-dessous.

II.6. Méthodologie de conception

La modélisation multi-échelle est un support pour l'extrapolation des microprocédés à l'échelle industrielle par numbering-up. Cette approche multi-échelle peut être appliquée afin de mieux structurer l'objet quand il s'agit d'un numbering-up interne ou de mieux connecter les objets quand il s'agit du numbering-up externe.

II.6.1. Relation entre les différentes échelles d'une structure

Un réseau multi-échelle met en jeu plusieurs systèmes imbriqués avec des variables dépendantes. Il a été constaté le long de l'analyse hydrodynamique, que le dimensionnement d'un réseau complexe doit se faire d'une façon graduelle. Il nécessite tout d'abord la connaissance et l'optimisation du comportement de la structure élémentaire qui, lui aussi, dépend d'un certain nombre de degrés de liberté. Dans les conditions de cette étude, ces degrés de liberté sont le rapport interne des résistances hydrodynamiques et le nombre de canaux mis en parallèle.

Le passage à une échelle supérieure implique l'ajout d'autres degrés de liberté, à savoir le nombre de structures de l'échelle inférieure à relier et le nouveau rapport de résistance interne $r_{i,i+1}$ résultant qui, cette fois-ci, dépendra des degrés de liberté de l'échelle inférieure. Ainsi, en augmentant le nombre d'échelles, le nombre de degrés de liberté augmente. C'est la raison pour laquelle des contraintes doivent être imposées pour limiter le nombre de cas possibles.

Par ailleurs, la compréhension du comportement hydrodynamique d'une structure à deux échelles permet de prévoir celui gouvernant les échelles supérieures. Le caractère prédictif de cette configuration constructale est lié aux deux raisons suivantes:

- d'une part, la conception géométrique du réseau global repose sur la reproduction d'une même architecture (motif) à différents niveaux de la structure.
- d'autre part, la relation linéaire entre la perte de charge et le débit traversant les différentes conduites constituant le réseau global.

II.6.2. Contraintes de dimensionnement

La première partie de l'étude donne des lignes directrices pour la construction des réseaux. Elle permet de guider le concepteur dans le choix des paramètres géométriques afin de concevoir des réseaux avec une performance hydrodynamique (distribution des flux, perte de charge) sous les contraintes imposées. Les *Figures II.4* et *II.8* permettent de donner une estimation de ces caractéristiques hydrodynamiques. Les résultats sont valables pour la parallélisation d'objets de géométries différentes.

En absence de contraintes sur les dimensions des systèmes de distribution et de collecte, il est possible de concevoir des réseaux optimaux du point de vue de la maldistribution et de la perte de charge. En effet, si la maldistribution est le critère le plus important, on peut concevoir des réseaux multi-échelles dont la maldistribution ne dépasse pas une valeur donnée.

A partir de la *Figure II.4* et pour un nombre donné de canaux, on peut déterminer le rapport de résistances internes qui permet de ne pas dépasser une maldistribution donnée. Lorsque le nombre de canaux ou d'objets à paralléliser est important, le rapport de résistances nécessaire pour maintenir la maldistribution à sa limite imposée devient important. Il sera nécessaire dans ce cas de passer à une échelle supérieure. Le problème de parallèlisation des canaux individuels devient alors un problème de parallèlisation des ensembles de canaux en parallèle, dont la résistance équivalente est déterminée à partir de la *Figure II.8*. Le choix de nouveaux systèmes de distribution nécessaires pour maintenir une maldistribution donnée se fait à nouveau à l'aide de la *Figure II.4*. Ce processus est répété autant de fois que le réseau multi-échelle l'exige.

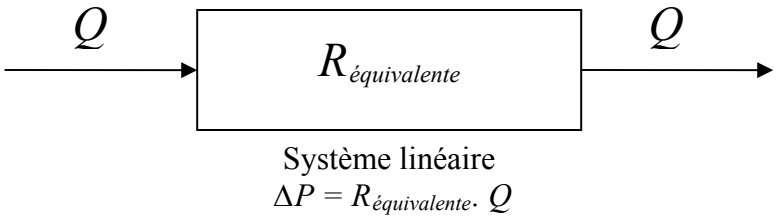


Figure II.16. *Schéma global d'un système linéaire.*

On peut appliquer cette approche de connectique à différents systèmes ou objets microstructurés présentant une évolution linéaire de la perte de charge par rapport au débit d'alimentation. Ces objets en question peuvent être un canal individuel de section constante ou variable, régulière ou aléatoire. Ils peuvent être aussi des structures multi-échelles qu'on parallélise pour monter à un niveau d'échelle supérieur ou encore des microréacteurs pour différentes fonctions. La principale condition à vérifier est que la relation entre la perte de charge et le débit traversant cet objet est linéaire (ou au moins linéarisable) dans les conditions de fonctionnement envisagées (*Figure II.16*).

On peut aussi avoir des contraintes qui imposent le nombre d'objets parallèles au niveau de chaque échelle ainsi que le nombre d'échelles. Dans ce cas le problème devient beaucoup plus simple du point de vue du dimensionnement. En effet, il suffit de choisir à chaque étape de conception le rapport de résistance approprié permettant de satisfaire la contrainte de maldistribution.

Ceci implique que les dimensions des conduites de distribution et de collecte seront choisies de manière à aboutir au rapport nécessaire. On peut ainsi s'attendre à ce que l'architecture globale ne soit pas régulière. Par exemple, on peut avoir des conduites de distribution où le diamètre varie d'une façon irrégulière en passant d'une échelle à une autre.

II.6.3. Répartition des microcanaux et son impact hydrodynamique

Un nombre élevé de canaux doit être distribué sur un nombre élevé d'échelles tout en évitant un arrangement inadéquat de ces canaux capable d'engendrer des caractéristiques moins intéressantes que celles des structures avec un nombre d'échelles plus faibles. Cet arrangement dépend en premier lieu du nombre de canaux à relier.

En effet, la manière d'arranger les canaux dans des configurations multi-échelles a pour conséquence une modification des rapports de résistance internes et donc des caractéristiques hydrodynamiques du réseau global. De nombreuses possibilités de distribuer ces canaux sur les différentes échelles sont possibles et le choix rigoureux d'un arrangement optimal nécessitera de tester toutes les configurations possibles et d'en choisir la meilleure. Cependant, quelques tendances globales ressortent de cette étude hydrodynamique.

La comparaison des différentes géométries révèle que les réseaux à quatre échelles présentent des caractéristiques hydrodynamiques plus intéressantes comparées aux réseaux à trois échelles. En effet, à partir d'une configuration élémentaire composée de n_1 canaux en parallèle résulte une résistance hydrodynamique équivalente $R_{1.2}$ qui va diminuer avec l'augmentation de ce nombre n_1 (si $n_1 < n^{optimum}$). En passant à une structure à trois échelles, le rapport de résistances internes résultant $(r_{2.3})$ sera d'autant plus faible que n_1 est important (en raison de la faible valeur de la résistance globale d'une structure à deux échelles)**.** Par conséquent, il n'est pas recommandé dans ce cas de mettre un nombre d'objets n_2 élevé au niveau de la deuxième échelle pour limiter la maldistribution des débits à travers ces objets. D'autre part, ce faible rapport de résistances est lui-même aussi à l'origine d'une importante résistance équivalente à une structure à trois échelles ($R_{1.3}$). Ainsi, le passage à une structure à quatre échelles a comme conséquence un nouveau rapport élevé. Ceci permet cette fois-ci de mettre plus de ramifications au niveau de la quatrième échelle.

On peut ainsi prévoir qu'il faudrait alterner la répartition des nombres élevés de canaux sur les différentes échelles du réseau. Il est donc recommandé d'agencer un nombre élevé de canaux au niveau de la première échelle puis d'agencer un faible nombre au niveau de l'échelle suivante, puis à nouveau, agencer un nombre plus élevé dans l'échelle d'après et ainsi de suite en alternant jusqu'à la dernière échelle.

Il ressort aussi pour ces mêmes contraintes qu'un nombre d'échelles pair est mieux adapté pour répartir un nombre élevé de canaux qu'un nombre d'échelle impair en raison du sens de l'évolution du rapport de résistances internes. Cependant, si des contraintes géométriques sur les chambres de distribution ne sont pas imposées, il serait possible d'adapter la résistance des conduites de distributions R_i à celles des réseaux de canaux ($R_{I,i}$), pour assurer le rapport de résistances approprié à chaque niveau de la structure.

Ainsi, on peut constater que dans ces géométries multi-échelles, tous les paramètres géométriques sont imbriqués. Une simple modification d'un paramètre géométrique entraîne la modification de tous les autres paramètres au niveau des différentes échelles et donc des différentes caractéristiques hydrodynamiques dans la structure globale.

II.7. Conclusion

Le comportement hydrodynamique des réseaux multi-échelles correspondant à l'extrapolation des microréacteurs a été étudié en utilisant une modélisation linéaire basée sur un modèle de résistances hydrodynamiques. Les résultats issus de cette analyse permettent d'identifier les principaux paramètres agissant sur des critères hydrodynamiques comme la distribution du fluide et les pertes de charge résultantes. Des lignes directrices pour la conception de ces réseaux sont ainsi dégagées le long de cette étude.

En absence de contraintes liées au volume de la chambre de distribution ou au nombre de canaux mis en jeu, une configuration optimale donnant la distribution la plus uniforme possible et réduisant la perte de charge globale, consiste à concevoir des chambres de distribution et de collecte donnant une résistance hydrodynamique très faible devant celles des microcanaux. Ceci peut être réalisé en augmentant le rapport de diamètres entre la conduite de distribution et le microcanal alimenté et/ou en diminuant leur rapport de longueurs. Ceci permet d'assurer la même alimentation pour chaque canal dans la structure. Néanmoins, le nombre de canaux mis en réseau ne doit pas dépasser celui à partir duquel la perte de charge globale augmente à nouveau. D'autre part, des canaux de diamètres élevés favorisent la création de volumes morts alors que l'augmentation de la longueur des canaux implique une augmentation de la perte de charge globale.

Dans le cas où des contraintes sur les dimensions des conduites sont imposées et qu'il faut travailler avec un grand nombre de canaux, il devient nécessaire de passer à des configurations où le flux est subdivisé sur plusieurs échelles. On remplace ainsi la chambre de distribution ordinaire par un système arborescent reliant des réseaux de microcanaux entre eux.

Les résultats de cette étude montrent que l'optimisation de la connectique entre les microcanaux améliore l'uniformité de la distribution des flux au niveau de chaque échelle de la structure et permet l'obtention d'une résistance globale minimale correspondant à la géométrie globale. Il a été constaté que le nombre de canaux doit être réparti différemment sur les

différentes échelles. Un nombre élevé de canaux au niveau de la deuxième échelle est à éviter du fait que le rapport de résistance interne à ce stade est dans la plupart des cas relativement faible. La première et la troisième échelle sont les niveaux qui peuvent tolérer un nombre plus important de canaux. Néanmoins, en raison des valeurs plus élevées du rapport de résistances à la troisième échelle, cette dernière tolère plus de canaux que la première échelle.

Ainsi, le passage d'une échelle à une autre entraîne des changements dans les valeurs des résistances internes. Le rapport résultant en passant de la deuxième à la troisième échelle est souvent plus faible que celui reliant la première et la deuxième échelle. Par ailleurs, le nombre de canaux à agencer au niveau de la deuxième échelle doit être inférieur à celui déjà utilisé en première échelle. A nouveau, le passage de la troisième échelle à la quatrième échelle induit des rapports de résistances relativement plus importants que les autres rapports déjà résultants, ce qui permettra de paralléliser un nombre plus élevé de configurations inférieures.

Notons que le dimensionnement optimal d'un composant quelconque, siège d'un écoulement, ne répond pas uniquement aux critères hydrodynamiques, mais nécessite la prise en compte du couplage avec les phénomènes physiques et chimiques.

Ces configurations multi-échelles peuvent avoir d'autres intérêts liés à la nature de l'opération étudiée. Par exemple, dans le cas d'un transfert de chaleur ou de matière où toutes les portions de la géométrie sont effectives, les quantités transférées devraient être plus importantes puisque la surface de contact est dans ce cas plus importante. De plus, ces géométries constructales et multi-échelles présentent l'intérêt d'être compactes et facilement superposables ce qui facilite leur intégration pour des applications à l'échelle industrielle.

Chapitre III

Caractérisation expérimentale de la distribution d'un fluide dans des réseaux structurés

La modélisation de l'hydrodynamique du fluide dans les réseaux de canaux présentés dans le *Chapitre II* a fait appel à plusieurs hypothèses simplificatrices et il convient de vérifier a posteriori la validité de ces hypothèses dans les conditions opératoires imposées. On examinera à travers ce chapitre le comportement réel du fluide dans des réseaux multi-canaux à l'aide d'une technique expérimentale non intrusive basée sur le calcul des temps de passage d'un traceur par analyse numérique d'images. Les différentes plaques analysées sont représentatives d'un réseau à deux échelles dont le rapport de résistances internes est modifié en faisant varier les dimensions des conduites de distribution et de collecte.

L'écoulement dans les différents canaux constituant ces plaques est tout d'abord visualisé puis quantifié en estimant la vitesse globale dans chaque microcanal en parallèle. La distribution de débits obtenue expérimentalement est systématiquement comparée avec celle calculée à l'aide du modèle d'écoulement résistif.

III.1. Mesures hydrodynamiques dans des microsystèmes

Aux très petites échelles, des mesures précises des écoulements requièrent des outils spécifiques adaptés à la dimension caractéristique de l'échelle considérée. Par ailleurs, l'emploi de méthodes classiques peut altérer la fiabilité des données et induire des incertitudes élevées sur la mesure expérimentale. Dans ce qui suit, on passera en revue quelques exemples décrivant des méthodes de mesures employées pour caractériser l'écoulement dans un microcanal ainsi que des exemples de mesure de la distribution du fluide à travers les réseaux de canaux.

III.1.1. Mesure du coefficient de frottement

Au cours des dernières années, plusieurs auteurs ont étudié expérimentalement le comportement du fluide dans des microvolumes en estimant le coefficient de frottement dans des microcanaux à parois lisses ou rugueuses et ce en utilisant des mesures de perte de charge. Les résultats sur le comportement du fluide dans les microdimensions sont parfois contradictoires vis-à-vis des déviations des lois de la microfluidique par rapport aux lois usuelles.

Certaines études affirment que les lois classiques restent valables pour décrire les écoulements des fluides incompressibles en régime isotherme et laminaire (Judy et al., 2002; Wu et Cheng, 2003 ; Yue et al., 2004 ; Kohl et al., 2005a). Kohl et al. (2005b) ont développé un système pour mesurer la pression à l'intérieur des canaux. Le capteur de pression est basé sur une membrane mince construite à partir de silicium traité avec l'hydroxyde de potassium par voie humide rapide. La membrane est de très faibles dimensions (0,564 mm de largeur, 10 mm de longueur et 50 μm d'épaisseur). La variation de pression dans le canal déforme la surface de la membrane et entraîne un changement de l'angle d'une lumière réfléchie sur cette surface. Un capteur optique étalonné pour des mesures de pression est utilisé pour mesurer la déviation du laser réfléchi. Kohl et al. (2005a) ont appliqué leur méthode de mesure sur des canaux de différents diamètres hydrauliques (de 25 à 100 μm) et pour un écoulement d'air et d'eau

successivement. Ils ont ainsi confirmé que les coefficients de frottement prédits à partir des écoulements en macroconduites restent valables pour les microécoulements.

Les déviations parfois enregistrées, sont généralement expliquées par l'existence d'incertitudes expérimentales liées aux défauts de fabrication ou encore aux limitations de la métrologie pour des mesures locales. Cela n'exclut pas, toutefois, la possibilité d'amplification des effets de parois et les effets électro-visqueux, souvent négligés en macro-fluidique, mais dont la quantification reste difficile et peu concluante.

Des mesures plus précises ont récemment été effectuées en employant la technique expérimentale de la micro-*PIV* (*Particle Image Velocimetry*). Silva et al. (2008) ont comparé des mesures expérimentales de vitesse dans un canal (DantecDynamics®) à section variable (avec $637\mu m$ de diamètre hydraulique et *1.6%* de rugosité relative) avec des résultats issus des simulations numériques fines et ce en supposant un canal à parois lisses. Des écarts de *11%* sur les valeurs des nombres de Poiseuille calculés expérimentalement ont été enregistrés.

Il ressort ainsi que malgré la présence de quelques écarts aux lois classiques d'écoulement, ces dernières restent les mieux adaptées pour décrire le comportement du fluide dans les microsystèmes.

III.1.2. Mesure de la distribution du fluide

La distribution du fluide dans une géométrie donnée est dans la plupart des cas, responsable de la distribution de différentes grandeurs physiques et chimiques telles que la température du fluide, ses propriétés physiques et rhéologiques, le rendement d'un produit, etc. Il est important d'accéder à des mesures locales de ces grandeurs afin de pouvoir expliquer et modifier les mesures globales qui en découlent. La difficulté de réaliser des mesures expérimentales locales dans un microsystème s'accroît lorsqu'il s'agit d'un réseau de microconduites dont l'accès reste, dans la majorité des cas, très difficile.

La métrologie nécessaire pour le contrôle des microsystèmes est en développement continu. Elle doit couvrir tous les phénomènes y opérant tout en respectant les contraintes imposées par le procédé. Pour les unités industrielles, l'intégration de microcapteurs adaptés à la dimension du volume de contrôle est indispensable pour le contrôle continu de l'opération mise en jeu. Par ailleurs, les mesures expérimentales non intrusives le plus souvent basées sur une analyse optique, sont plutôt limitées aux systèmes en phase de conception et de développement.

Pfeifer et al. (2004) ont mesuré la distribution des flux dans un réacteur à microcanaux à l'aide de la technique d'anémométrie à fil chaud à température constante. Cependant cette technique de mesure est limitée à des canaux ouverts à la sortie ce qui ne permet pas son utilisation pour des systèmes plus complexes.

Les méthodes de suivi optique du fluide sont le plus souvent employées pour caractériser les régimes d'écoulement notamment pour les écoulements gaz-liquide. En effet, un changement du régime d'écoulement du fluide d'un canal à un autre peut être une indication sur la présence

d'une maldistribution dans le réseau de microcanaux (Jähnisch et al., 2000; De Mas et al., 2005). Ajmera et al. (2002) ont analysé le comportement d'un microréacteur à lit catalytique où le milieu poreux est alimenté par un distributeur constructal conçu par une succession de subdivisions dichotomiques d'un canal principal en 64 microcanaux parallèles. La distribution du fluide sur le microréacteur est analysée expérimentalement par des techniques de visualisation.

En se basant sur l'étude de l'écoulement monophasique et biphasique dans des canaux élémentaires, De Mas et al. (2005) ont présenté une étude expérimentale portant sur l'extrapolation des microréacteurs gaz-liquide fabriqués à base de silicium par photolithographie. Le réseau conçu pour cet effet se compose de trois plaques empilées, chaque plaque contient 20 canaux parallèles alimentés par du gaz et du liquide à travers des systèmes de distribution. Ces derniers dominent la perte de charge globale dans le réseau comparé aux microcanaux parallèles de telle sorte que les fluctuations dues au mélange gaz liquide ne modifient pas la perte de charge du système global. Ils ont réalisé une visualisation de l'écoulement gaz-liquide dans les canaux de la plaque supérieure à l'aide d'un système d'imagerie optique en utilisant la Rhodamine B (0.01 % en poids dans l'éthanol) comme traceur fluorescent et ont vérifié ainsi que l'écoulement piston est établi dans la plupart des canaux de cette plaque. La présence d'un écoulement gaz-liquide de nature piston est aussi vérifiée en intégrant des microcapteurs de vitesse au niveau de la plaque du milieu où le suivi optique est impossible.

La technique de micro-*PIV* couplée au rayonnement infrarouge (*IR-μPIV*), à l'inverse des autres techniques optiques, ne nécessite pas des matériaux transparents et permet d'étudier l'écoulement du fluide dans le réacteur fabriqué avec le matériau approprié (conservation de la géométrie interne du canal et de ses dimensions caractéristiques, rugosité du matériau, etc.). Cependant, son implémentation reste toutefois difficile à cause du faible rapport signal/bruit. Jones et al. (2008) ont étudié expérimentalement, en employant cette technique, la distribution du liquide sur une plaque de silicium contenant 76 canaux en parallèle (*110 μm* de largeur et *371 μm* de profondeur). Ces canaux sont alimentés par une chambre de distribution et le fluide est collecté dans une chambre de collecte symétrique à la première. L'ensemble des conduites est gravé sur la même plaque de silicium. L'écoulement du fluide est étudié en suivant l'écoulement de particules de traceur, éclairées par une lumière infrarouge à l'aide des fibres optiques. Les images sont capturées par une caméra infrarouge puis traitées avec un système *PIV* optimisé. La maldistribution du fluide obtenue pour un Reynolds de 10.2 (2.4 %) est moins importante que celle obtenue pour un Reynolds de 102 (29.9 %). Ces résultats ont été en bon accord avec des simulations numériques réalisées sur la même configuration de plaque. Une optimisation numérique des chambres de distribution et de collecte a permis de réduire d'environ 30 % la maldistribution et la perte de charge initialement estimées pour cette plaque. Ainsi, il ressort de leur étude que la distribution du fluide dépend de la valeur du débit employé (tout en étant en régime laminaire), ce qui n'est pas prévu par le modèle résistif. Un tel résultat peut être expliqué par un éventuel impact des pertes de charges singulières sur la distribution globale.

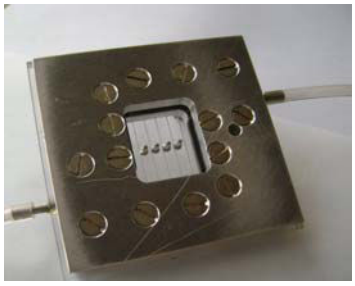
Le choix de la technique expérimentale dépend fortement de la forme géométrique du réacteur considéré, des dimensions mises en jeu et de la nature de la mesure à réaliser (locale ou globale). Les techniques standards peuvent toutefois être adaptées pour des mesures globales en continu notamment lorsqu'il s'agit d'unités industrielles.

III.2. Etude expérimentale des structures à deux échelles

III.2.1. Configurations analysées

La configuration élémentaire à deux échelles est représentée par trois modèles de plaques structurées avec différentes dimensions. Le milieu fluidique est constitué par un ensemble de canaux gravés sur une plaque transparente à base d'altuglas sur laquelle on superpose une autre plaque en altuglas. L'étanchéité de l'ensemble est assurée en rajoutant des joints entre les deux plaques d'altuglas, ainsi que des plaques métalliques et des vis de serrage de part et d'autre du réseau fluidique.

Tableau III.1. *Photographies des différentes plaques structurées caractérisées expérimentalement dans cette étude.*

Plaque A	***Plaque B***	***Plaque C***
		

Toutes les plaques structurées, analysées dans le cadre de cette étude, se composent de microcanaux parallèles avec une section carrée ($e = l_1$). Les autres caractéristiques géométriques sont reportées sur le *Tableau III.2*. On rappelle que l'indice 1, dans les notations portées sur la *Figure III.1,* est associé à la première échelle (microcanaux en parallèle) et l'indice 2 à la deuxième échelle dans la structure (chambres de distribution et de collecte). Les différents rapports de résistances internes résultent des différentes longueurs de microcanaux en parallèle ainsi que des différentes dimensions des systèmes de distribution et de collecte.

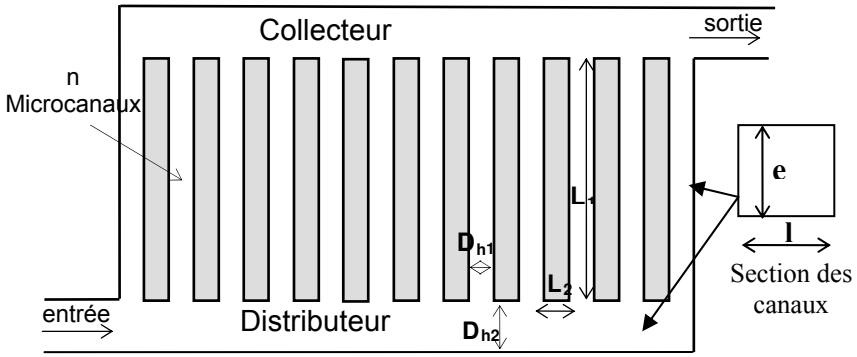


Figure III.1. *Schéma équivalent aux différentes structures A , B et C.*

Tableau III.2. *Caractéristiques géométriques des réacteurs étudiés.*

Configurations	***n***	***e [mm]***	***l_1 [mm]***	***l_2 [mm]***	***L_1 [mm]***	***L_2 [mm]***	***D_{h1} [mm]***	***D_{h2} [mm]***	***r***
Plaque A	10	0,5	0,5	5	20	3	0,5	0,91	66666
Plaque B	5	0,5	0,5	0,5	50	20	0,5	0,5	2,5
Plaque C	5	0,5	0,5	5	30	10	0,5	0,91	30000

D_{hi} est le diamètre hydraulique d'une conduite rectangulaire située à l'échelle *i* du réseau fluidique (*Figure III.1)* :

$$D_{hi} = \frac{2.e.l_i}{e + l_i} \qquad \text{i} = (1\ ;\ 2) \qquad \text{(III.1.1)}$$

La résistance hydrodynamique correspondante s'exprime au niveau de chaque échelle comme suit :

$$R_i = 32.\lambda.\frac{\mu.L_i}{D_{hi}^2(e.l_i)} \qquad \text{(III.1.2)}$$

Le facteur de correction géométrique λ s'exprime pour $0 \leq e/l_i \leq 1$ de la manière suivante:

$$\lambda = \frac{3/2}{(1-0{,}351e/l_i)^2.(1+e/l_i)^2} \qquad \text{(III.1.3)}$$

Le rapport e/l_i dans l'équation est remplacé par le rapport l_i/e dans le cas où $e/l_i \geq 1$.

III.2.2. Méthodes expérimentales

Pour caractériser expérimentalement les différentes plaques structurées, deux techniques expérimentales sont utilisées. La première est basée sur la détermination successive des champs de vitesses dans chaque canal individuel. Cette technique est très bien adaptée pour des mesures locales mais n'est pas tout à fait adaptée pour une mesure globale de la maldistribution dans un réseau, notamment lorsque les réseaux ont un grand volume apparent. La deuxième technique consiste à déterminer la distribution globale du fluide en suivant l'écoulement d'un traceur en fonction de temps. Cette méthode expérimentale est appliquée pour déterminer la distribution du fluide dans les différents types de réseaux étudiés.

III.2.2.1. Champs de vitesses

La plaque *A* a été caractérisée dans un premier temps à l'aide d'un appareil micro-*PIV* (*Particle Image Velocimetry*). Elle est alimentée en continu, à l'aide d'un pousse-seringue (*Kd Scientific* ; Hz 50/60), avec de l'eau distillée contenant des particules de traceur dont l'écoulement est suivi à l'aide d'un microscope inversé (Leica). Des particules hydrophiles de latex de l'ordre du micron de diamètre (Merck Estapor ; diamètre = *0.88 µm* ; ρ = *1.056 g/cm*^{3}) sont choisies comme traceur. La zone à contrôler est éclairée à l'aide d'un microstroboscope émettant à une longueur d'onde de *530 nm*.

Un couple d'images est capté par une caméra (Flowsense Dantec, une résolution de 2048x2048 et une profondeur de champs de 10 à 40µm) à différents endroits de la plaque transparente. Le temps entre deux images d'un même couple est fixé à *500µs*. Le traitement de ces images est effectué à l'aide d'un logiciel (Flow Manager 4.6) permettant de réaliser une corrélation croisée pour obtenir les champs de vitesse dans la zone contrôlée.

La micro-*PIV* est destinée à caractériser les micro-écoulements du fluide dans des microsystèmes de très faibles dimensions. La zone de contrôle est limitée à un carré de *1400 µm* de côté, ce qui fait que la détermination des champs de vitesse dans l'ensemble de la structure doit se faire en plusieurs étapes. Il faut préciser tout de même qu'en déplaçant la zone focalisée le long de la structure, des perturbations de l'écoulement peuvent être engendrées. Il faut donc s'assurer, avant chaque capture d'image que l'écoulement est bien établi et que la plaque reste toujours horizontale.

L'écoulement observé dans un canal de section carée est de nature laminaire pour les débits appliqués (*Tableau III.3*) et les profils caractéristiques de l'écoulement laminaire sont bien

apparents dans plusieurs sections du canal (*Figure III.2*). Il est à noter qu'au niveau des bifurcations ou des confluents de la configuration à deux échelles, l'écoulement s'établit assez rapidement malgré la présence des différentes singularités. Fujisawa et al. (2006) ont étudié expérimentalement le comportement du fluide dans une jonction en T à l'aide de la technique de la *µPIV*. Ils ont aussi observé que pour de faibles nombres de Reynolds, l'influence des bifurcations et des confluents sur les champs de pression est uniquement limitée à une petite région au voisinage de l'intersection du canal. Ils ont ainsi confirmé le bon accord entre les résultats des expériences et les résultats obtenus en utilisant des corrélations de la macrofluidique.

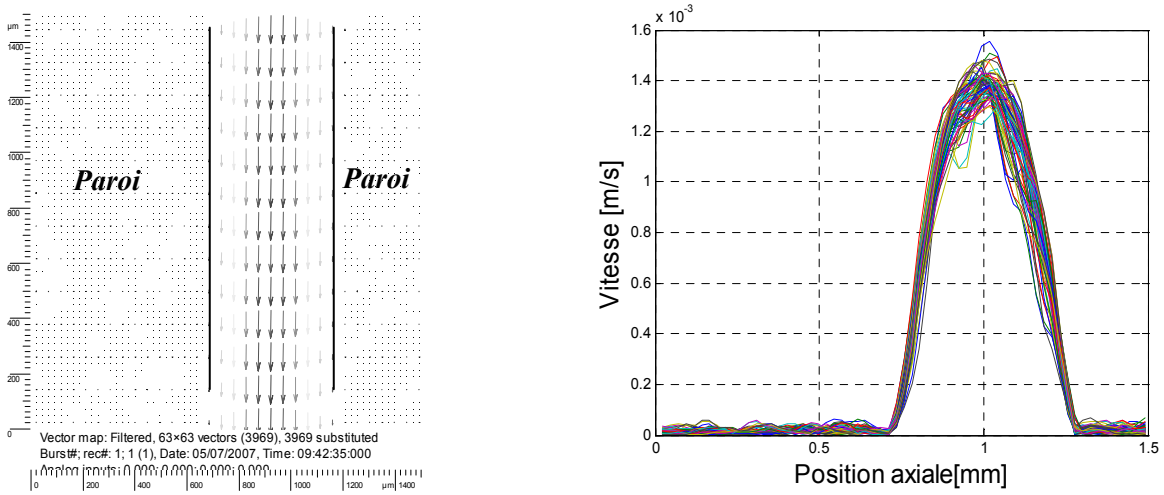


Figure III.2. *Représentation des vitesses dans une zone de contrôle d'un microcanal dans le réacteur A : champ de vitesse (à gauche) ; profils de vitesses (à droite).*

En plus de sa visualisation, il est aussi possible de quantifier l'écoulement du fluide considéré à l'aide de la *µPIV*. On s'intéresse ici à la détermination de la vitesse maximale dans chaque microcanal en parallèle dans la structure afin de remonter au débit volumique le traversant. Comme c'est généralement le cas pour un canal cylindrique, on considère que la vitesse moyenne du fluide circulant dans le canal représente approximativement la moitié de la vitesse maximale enregistrée au centre de ce dernier.

Tableau III.3. *Bilan sur les débits volumiques globaux.*

Débit imposé expérimentalement [m^3/s]	$3{,}5.10^{-9}$	7.10^{-9}
Nombre de Reynolds à l'entrée	1,3	2,5
Débit déterminé à partir des mesures [m^3/s]	$2{,}7.10^{-9}$	$5{,}3.10^{-9}$
Ecart calculé sur le débit [%] $100\,\frac{Q_0(imposé) - Q_0(mesuré)}{Q_0(imposé)}$	22,9	24,3

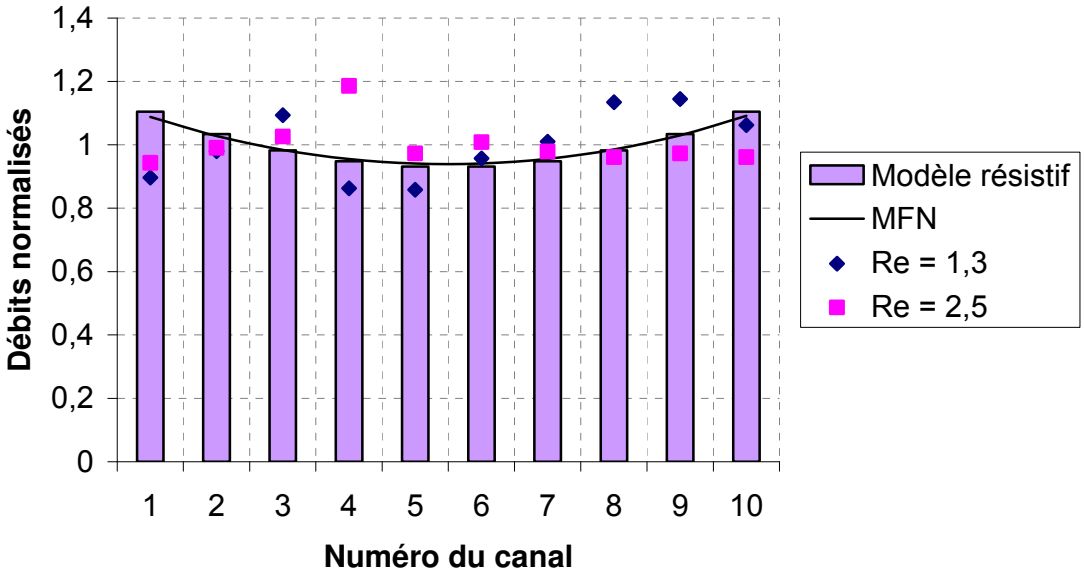


Figure III.3. *Distribution expérimentale du fluide sur les microcanaux parallèles de la plaque A, déterminée à partir des mesures issues de la µPIV pour deux nombres de Reynolds et comparée à deux types de simulations.*

Sur la *Figure III.3* sont portées les débits circulant dans les canaux parallèles de la structure A, mesurés expérimentalement à l'aide de la *µPIV* pour deux nombres de Reynolds. La distribution résultante est comparée avec celle obtenue par MFN ainsi que celle déterminée en considérant le modèle résistif.

L'analyse de la répartition des débits mesurés par la *µPIV* montre que les valeurs des débits volumiques fluctuent autour des valeurs des débits simulés. En effet, la forme globale de la distribution n'est pas très bien marquée. Plusieurs raisons peuvent être la cause de cette dispersion des mesures. La première cause est directement liée aux erreurs expérimentales. En effet, la détermination des débits repose sur la détermination de la vitesse maximale dans le canal à partir des champs de vitesse fournis par le logiciel de traitement. Il est toutefois possible que la résolution des images de la *µPIV* ne soit pas tout le temps bonne, ce qui peut engendrer des fluctuations dans les valeurs déterminées, à la fois sur le plan qualitatif et sur le plan quantitatif. Le bruit expérimental observé sur le profil de la *Figure III.2* confirme cette source d'erreur. D'autre part, comme il a déjà été précisé, la zone de contrôle des vitesses ne couvre qu'une petite partie du canal. Une mesure plus complète devrait balayer toute la longueur du canal à analyser en prenant des images à plusieurs positions dans le canal.

Une autre possibilité est que les canaux n'ont pas tous exactement le même diamètre à cause d'une éventuelle déformation du matériau de fabrication. Néanmoins, les mesures de débit réalisées par le dispositif *µPIV* restent du même ordre qualitatif et quantitatif que les débits simulés. Les écarts calculés sur les valeurs de débit total ne dépasse pas les 25% pour les deux débits testés (*Tableau III.3*).

III.2.2.2. Simulations par Mécanique des Fluide Numérique (*MFN)*

Les valeurs des débits volumiques déterminées par une simulation *MFN* sont également présentées sur la *Figure III.3* et comparées aux valeurs déterminées par le modèle résistif. La simulation est réalisée en utilisant un code commercial (Fluent). Un maillage cubique ($1{,}2.10^5$ volumes élémentaires) adapté à la structure (avec 64 faces par section du microcanal de la première échelle et une dimension de la maille multipliée par deux pour le reste de la configuration) est utilisé pour simuler l'écoulement de l'eau.

On peut facilement voir que sous ces conditions de régime laminaire, isotherme et complètement développé, les débits issus de la simulation par *MFN* sont en parfait accord avec les débits calculés par le modèle. De très légères déviations sont observées au centre et aux extrémités du réseau à deux échelles, probablement dues aux singularités présentes dans la structure et dont l'effet reste invisible par la modélisation avec une approche systémique.

III.2.3. Technique d'analyse d'images

La technique de micro-PIV, en plus du fait qu'elle n'est pas adaptée pour avoir une mesure globale de la distribution, nécessite des géométries planes dont les dimensions globales rentrent dans la plage de réglage du microscope inverse. Ceci n'est pas le cas pour les plaques B et C à cause du coffrage métallique assurant l'étanchéité, ce qui a nécessité de développer une technique basée sur l'analyse d'images. Cette technique expérimentale consiste à :

- suivre l'avancement d'un traceur dans le réseau fluidique de la structure.
- traiter les images pour extraire des distributions de temps de séjour.
- en déduire les vitesses et les débits dans les différents canaux de la structure.

III.2.3.1. Visualisation de l'écoulement d'un traceur coloré

Un dispositif expérimental a été réalisé pour mesurer la distribution des débits à travers les plaques transparentes. Il comporte un support de plaque rétroéclairé à travers une feuille de papier calque, placée au dessous des plaques afin d'assurer une dispersion uniforme de la lumière à travers toute la zone contrôlée.

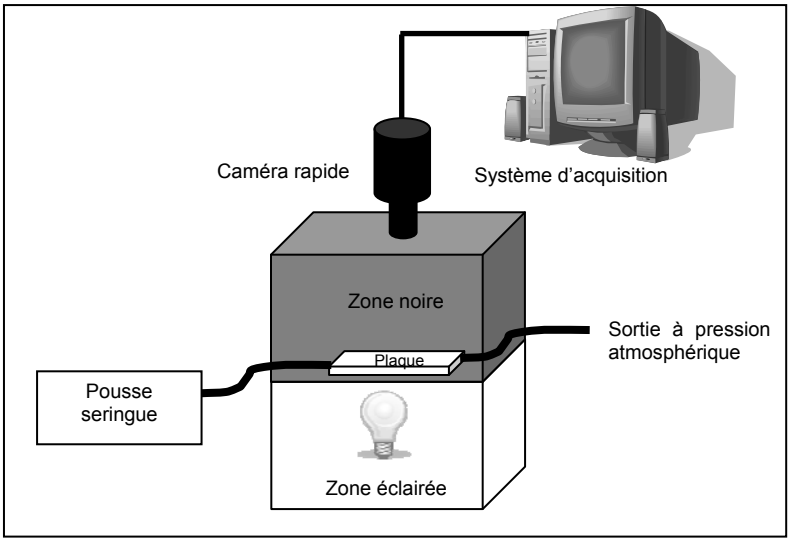


Figure III.4. *Montage expérimental comprenant la plaque analysée et la caméra rapide reliée au système d'acquisition.*

La plaque et la caméra sont toutes les deux placées dans une boite noire totalement fermée pour éviter les zones d'ombres et empêcher toute perturbation externe de la lumière. La plaque est alimentée par un pousse-seringue (*Kd Scientific* ; Hz 50/60) permettant de délivrer de très faibles débits volumiques (de l'ordre du µl/s). L'écoulement du traceur est suivi par une caméra rapide (*DALSA /CCD*) reliée à un système d'acquisition et permettant de prendre des images successives avec un intervalle de temps adapté au débit appliqué.

Le suivi de l'écoulement du traceur dans les différentes parties des plaques étudiées permet de vérifier les différentes hypothèses considérées par le modèle résistif. Il est possible de voir sur la *Figure III.5* que l'écoulement du fluide dans les conditions de l'expérience (*Re = 2*) est bien laminaire et que les turbulences ou les recirculations du fluide sont pratiquement absentes dans l'ensemble de la plaque. On peut aussi voir que le fluide à la sortie des canaux parallèles rejoint le fluide circulant dans la chambre de collecte sans former des turbulences particulières, ce qui laisse penser que le mélange dans la chambre de collecte se fait essentiellement par diffusion.

Dans le réacteur considéré (plaque A), les extrémités des conduites de distribution et de collecte sont susceptibles de former des zones mortes dans la plaque. En effet, dans ces deux coins de la plaque, l'avancement du traceur se fait d'une manière très lente comparé à celui observé dans les autres parties de la structure.

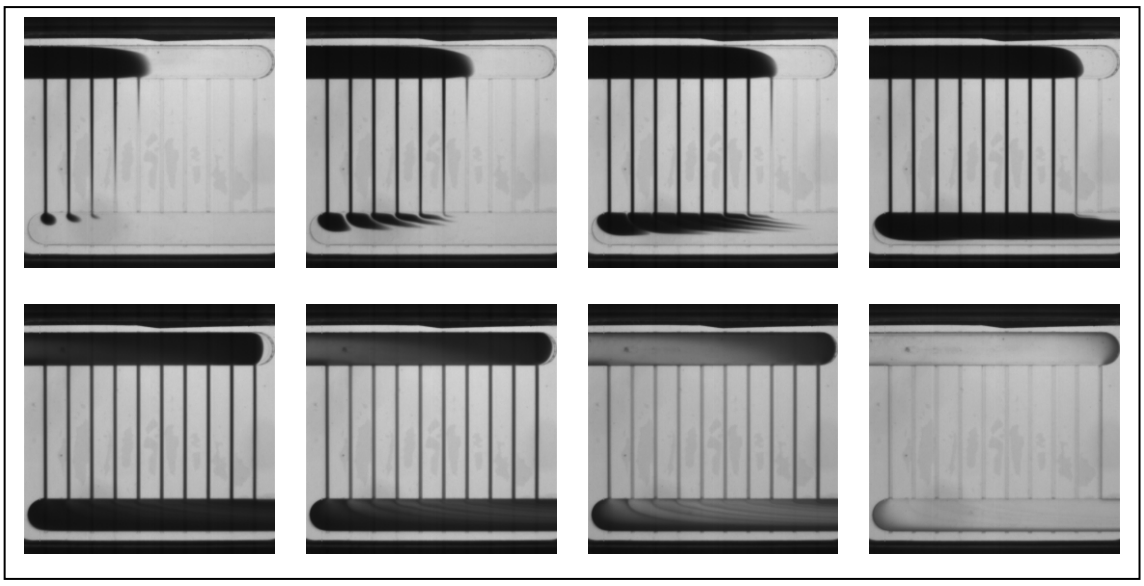


***Figure III.5**. Visualisation de l'écoulement du traceur à travers la plaque A (Re = 2); Phase de remplissage (haut) et phase de vidange (bas).*

On peut aussi voir sur la *Figure III.5* qu'en phase de vidange, ces mêmes zones se vident en dernier, ce qui peut engendrer de longues traînées sur les courbes de distribution de temps de séjour correspondantes.

III.2.3.2. Distribution des temps de séjour (DTS) dans un microcanal

L'analyse et le traitement numérique des images décrivant l'évolution d'un traceur dans le réseau fluidique, devrait permettre de remonter à des distributions de temps de séjour à travers différentes zones dans le réseau. En effet, les courbes de DTS peuvent être déterminées, non pas à partir d'une mesure physique complète, mais plutôt à partir d'une réponse numérique (échelle numérique de couleur) couplée à une observation physique (couleur surfacique du traceur). Cette technique expérimentale est expliquée plus en détails dans les sections ci-après.

Eléments théoriques

Dans un réacteur, les molécules séjournent pendant des temps qui s'écartent du temps de séjour moyen de différentes manières. Deux systèmes différents peuvent avoir un même temps de séjour moyen mais des distributions de temps de séjour différentes ce qui peut conduire à des rendements et des sélectivités différentes (Villermaux, 1993). L'examen de la distribution de temps de séjour est un moyen qui permet d'analyser et de comprendre la configuration interne des flux dans les réacteurs.

La détermination des courbes de distribution des temps de séjour est souvent réalisée d'une façon expérimentale par un suivi quantitatif de l'écoulement d'un traceur dans un volume

donné. Une injection d'un signal de traceur à un temps donné est effectuée à l'entrée de l'équipement à analyser. Le signal est ensuite récupéré à la sortie, afin de remonter à la distribution des temps de séjour. Des lois statistiques décrivant ces distributions sont alors définies. Les principales fonctions statistiques de distribution sont notées E(t) et F(t).

E(t) représente la fraction de fluide des substances contenues dans le courant sortant d'un réacteur et dont l'âge est compris entre les temps *t* et *(t + dt)*.

$$E(t) = \frac{C(t)}{\int_0^\infty C(t)dt} \tag{III.2.1}$$

avec

$$\int_0^\infty E(t)dt = 1 \tag{III.2.2}$$

F(t) représente la fraction de substance qui se trouvait dans le réacteur pendant une durée inférieure à t.

$$F(t) = \int_0^t C(t)dt \;\; ; \;\; F(0) = 0 \text{ et } F(\infty) = 1 \tag{III.3}$$

Les courbes de *DTS* permettent de définir les moments d'ordre n de la *DTS* tels que:

$$\mu_n = \int_0^\infty t^n E(t)dt \tag{III.4}$$

Le moment d'ordre 1 correspondant au temps de séjour moyen τ_s est déterminé à partir de l'expression suivante :

$$\mu_1 = \tau_s = \int_0^\infty tE(t)dt \tag{III.5}$$

La variance de la distribution caractérise l'étalement de la distribution *E(t)*, donc le mélange dans le réacteur. Elle est calculée en utilisant le moment d'ordre 2 de la *DTS* tel que:

$$\sigma^2 = \mu_2 - \mu_1^2 \tag{III.6}$$

Ces informations donnent accès à la dispersion dans le réacteur caractérisé. Dans le cas où la réponse à une impulsion de Dirac est une distribution gaussienne, la dispersion se traduit comme le rapport de la base du pic de concentration sur le temps de séjour moyen.

$$\frac{4\sigma}{\tau_s} = \frac{4\sqrt{\mu_2 - \mu_1^2}}{\mu_1} \tag{III.7}$$

Afin de mesurer la vitesse dans les canaux et de déterminer la distribution des temps de séjour (tout du moins le temps de séjour moyen) entre l'entrée et la sortie de chacun des canaux, la méthode développée ci-dessous va consister à exploiter des images obtenues par la caméra.

III.2.3.3. Traitement numérique des images

La technique utilisée pour déterminer la distribution interne des débits consiste à enregistrer l'évolution de l'écoulement du traceur en fonction du temps. Les images sont enregistrées en noir et blanc pour travailler avec une base de couleur limitée en nombre. Les séries d'images enregistrées à l'aide de la caméra rapide sont ensuite traitées numériquement à l'aide d'un logiciel de calcul (Matlab7) de la manière suivante:

- Dans une image de la plaque microstructurée, des zones de contrôle et des zones de référence sont définies pour chaque série d'image différente.
- Pour un canal individuel, la première zone de contrôle correspond à un nombre de pixels positionnés à l'entrée de ce canal. Une zone de contrôle similaire est définie à la sortie du même canal considéré.
- Le niveau de couleur sur l'image, noté ici intensité du gris *Ig*, va donc varier au cours du passage du traceur coloré à travers ces zones. La valeur de cette intensité est relevée en fonction de temps et initialisée en retranchant sa valeur à t = 0.
- On définit ensuite des zones de référence à proximité de l'entrée et de la sortie du canal. La valeur de l'intensité du gris dans une zone de référence est aussi initialisée puis continuellement retranchée de la valeur relevée dans la zone de contrôle correspondante. On détermine ainsi l'intensité du gris finale *Ig* telle que:

$$Ig = (I - I_0) - (I_r - I_{r0}) \qquad \text{(III.8)}$$

où I et I_0 représentent respectivement, l'intensité du gris brute dans la zone de contrôle et sa valeur à t = 0. I_r et I_{r0} représentent respectivement, l'intensité du gris dans la zone de référence et sa valeur à t = 0. Comme le traceur traverse uniquement le réseau fluidique, la variation du niveau du gris dans les zones de référence représente essentiellement les fluctuations enregistrées au moment de la capture d'image ainsi que les perturbations environnantes.

Détermination des concentrations du traceur

Dans le but de remonter aux valeurs des concentrations du traceur à partir des valeurs de l'intensité du gris, on se propose d'utiliser des relations reliant ces deux variables. Des solutions de concentrations connues en traceur sont injectées dans la plaque vide et une série d'images, sur laquelle on calcule une moyenne de l'intensité de gris, est enregistrée pour chaque concentration différente.

Les concentrations de la nigrosine employées pour construire les relations empiriques avec le niveau de gris sur les images, varient de 0,2 à 2g/l. L'intensité du gris dans la base de

couleur *RVB* (*Rouge* - *Vert* - *Bleu*) est associée, pour chaque pixel, à une échelle du niveau de gris variant de 0 (noir) à 255 (blanc). Des courbes d'étalonnage sont ainsi tracées pour les différentes plaques étudiées et les relations empiriques sont ensuite déterminées. Pour la plaque *A*, la concentration du traceur est reliée à l'intensité du gris de la manière suivante:

$$C[g/l] = 2{,}34.10^{-3} Ig^2 - 2{,}45.10^{-3} Ig \qquad \text{(III.9)}$$

On note qu'il s'agit ici d'une simple relation semi-empirique, valable uniquement pour ce cas considéré. En effet, cette relation inclut à la fois l'impact du matériau de fabrication ainsi que celui des dimensions géométriques (notamment l'épaisseur de la plaque au dessus du canal gravé). Pour la plaque B, la relation obtenue est la suivante :

.

$$C[g/l] = 2{,}15.10^{-3} Ig^2 - 4{,}41.10^{-3} Ig \qquad \text{(III.10)}$$

Néanmoins, on peut remarquer que les coefficients associés aux deux relations semi-empiriques ne sont pas très différents. Ceci est lié d'une part, au fait que le niveau de couleur du traceur domine la couleur des pixels au niveau des canaux et d'autre part, au fait que des zones de référence sont à chaque fois considérées pour calculer l'intensité de la couleur. On retient ainsi cette dernière relation pour caractériser la dernière plaque C.

Il faut tout de même préciser que la valeur de l'intensité relevée en fonction du temps correspond au niveau de gris à la surface du canal et non pas à la concentration volumique réelle du traceur. Ceci peut justifier le fait que la variation de la concentration du traceur en fonction de l'intensité du gris n'est pas représentée par une loi logarithmique comme celle de Beer Lambert.

Détermination des débits volumiques

En utilisant les courbes de signal du passage du traceur en fonction du temps en entrée et en sortie de canal tracées à partir du suivi du traceur coloré, il est possible de déterminer le temps de séjour moyen dans les différents canaux constituant les plaques structurées. Pour cela, il faut calculer les moments d'ordre 1 de ces courbes de concentrations.

Sensibilité du signal

Les observations faites sur les signaux de réponse montrent que, lorsque la plaque commence à se vider du traceur dont la concentration devient très faible, le signal de réponse devient très perturbé. La sensibilité de la caméra à la variation du niveau du gris rend en effet difficile l'obtention d'un signal exploitable.

Compte tenu de la grande incertitude sur les valeurs de la concentration du traceur dans cette dernière phase de vidange, la grande traînée apparue à la fin des courbes de concentrations du traceur n'est pas entièrement prise en compte dans le calcul des temps de séjour moyens. Dés

que le signal de sortie devient inférieur à celui enregistré à l'entrée, les valeurs des concentrations ne deviennent plus significatives et l'intégration des courbes de concentrations doit être arrêtée.

Pour tenir compte de ces incertitudes expérimentales liées à la capture des images et au traitement du signal, les erreurs systématiques sont représentées par un calcul de l'écart type calculé en répétant les expériences trois fois au minimum.

III.2.4. Distribution du fluide sur les différentes plaques

Les résultats du traitement des images sont reportés sur les figures ci-après pour les trois plaques étudiées. Une comparaison avec les résultats de la simulation numérique, réalisée en appliquant le modèle résistif, est systématiquement effectuée pour chacune de ces plaques structurées.

III.2.4.1. Distribution du fluide sur la plaque A

La distribution du fluide sur les 10 canaux en parallèle de la plaque A est déterminée expérimentalement à l'aide de l'analyse de la distribution des concentrations du traceur aux extrémités de ces derniers. Dans les séries d'images traitées pour cette plaque, une image est enregistrée chaque 0.4 s pour un nombre de Reynolds *Re = 2*.

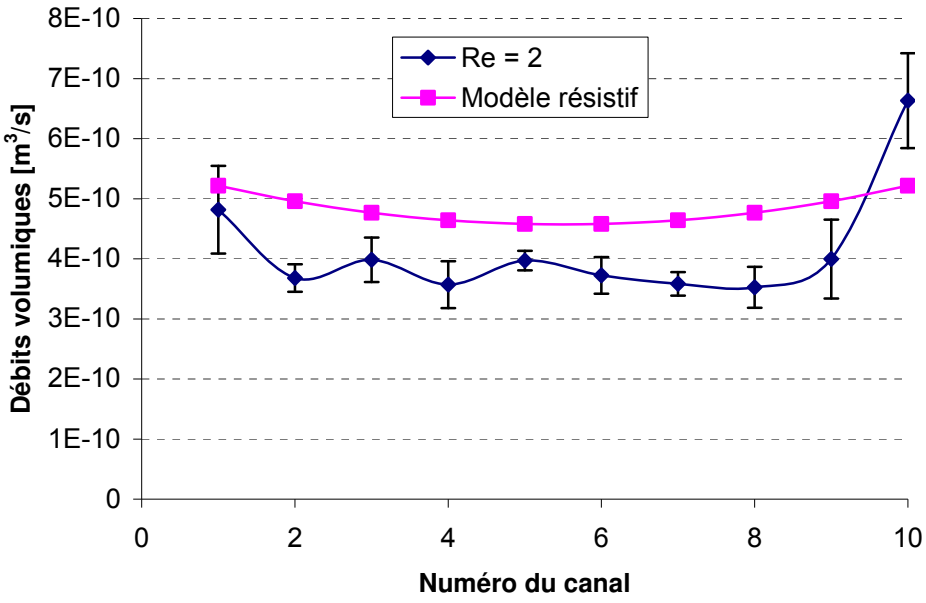


Figure III.6. *Distribution du fluide sur les 10 microcanaux en parallèle, obtenue pour un Reynolds = 2 comparée avec les résultats issus du modèle résistif.*

La simulation numérique de la distribution du fluide sur cette plaque a montré la présence d'une légère maldistribution des débits volumiques. Le rapport de résistance est dans ce cas

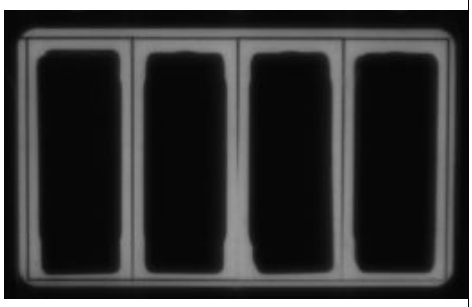
relativement élevé, ce qui réduit la non-uniformité des flux. Les mesures expérimentales révèlent pratiquement la même constatation avec quelques écarts pour certains canaux de la structure (spécialement le dernier canal où la reproductibilité des résultats est la plus mauvaise).

Les valeurs expérimentales des débits volumiques sont cependant plus faibles que celles calculées numériquement. On précise que cette plaque n'est pas complètement étanche du fait qu'elle ne contient pas de plaques métalliques de renfort entre les canaux en parallèle et ce à cause de la faible distance séparant ces microcanaux. Par conséquent, après un long usage, quelques fuites sont constatées à l'intérieur de la plaque. En effet, entre la plaque gravée par les canaux et la plaque mise au dessus pour refermer les canaux, des espaces vides se sont créés, ce qui fait que le fluide déborde des canaux pour les remplir. Une fois ces espaces remplis, ce fluide stagne à l'intérieur et le nouveau fluide qui arrive continue à avancer normalement. C'est la raison pour laquelle les fuites ne sont pas visibles sur les images de la *Figure III.5*.

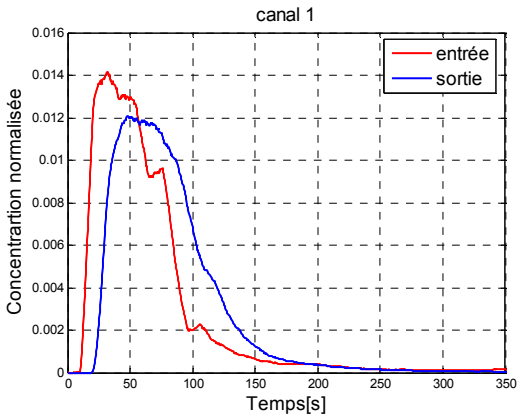
Néanmoins, en considérant les domaines d'incertitudes calculées pour chaque canal, on peut voir que l'allure de la courbe de distribution du fluide déterminée expérimentalement peut suivre la courbe déterminée numériquement, ainsi que celle qui avait été déterminée expérimentalement en utilisant la micro-PIV (*Figure III.3*). Les plus fortes déviations sont cependant enregistrées pour les canaux aux extrémités de la plaque, en partie à cause de la forme particulière des chambres de distribution et de collecte.

III.2.4.2. Distribution du fluide sur la plaque B

L'étanchéité de la plaque B est renforcée en ajoutant des plaques métalliques entre les microcanaux en parallèle. Le nombre de canaux en parallèle est limité à cinq afin d'éviter l'obtention des réseaux fluidiques de taille élevée et de garder ainsi une bonne définition des images capturées. La caméra capte les images avec les intervalles de temps suivants : (0,4 s - 0,2 s - 0,1 s - 0,05 s) respectivement pour les valeurs de nombre de Reynolds suivantes : (4 - 10 - 18 - 27).



Ecoulement à travers la plaque B



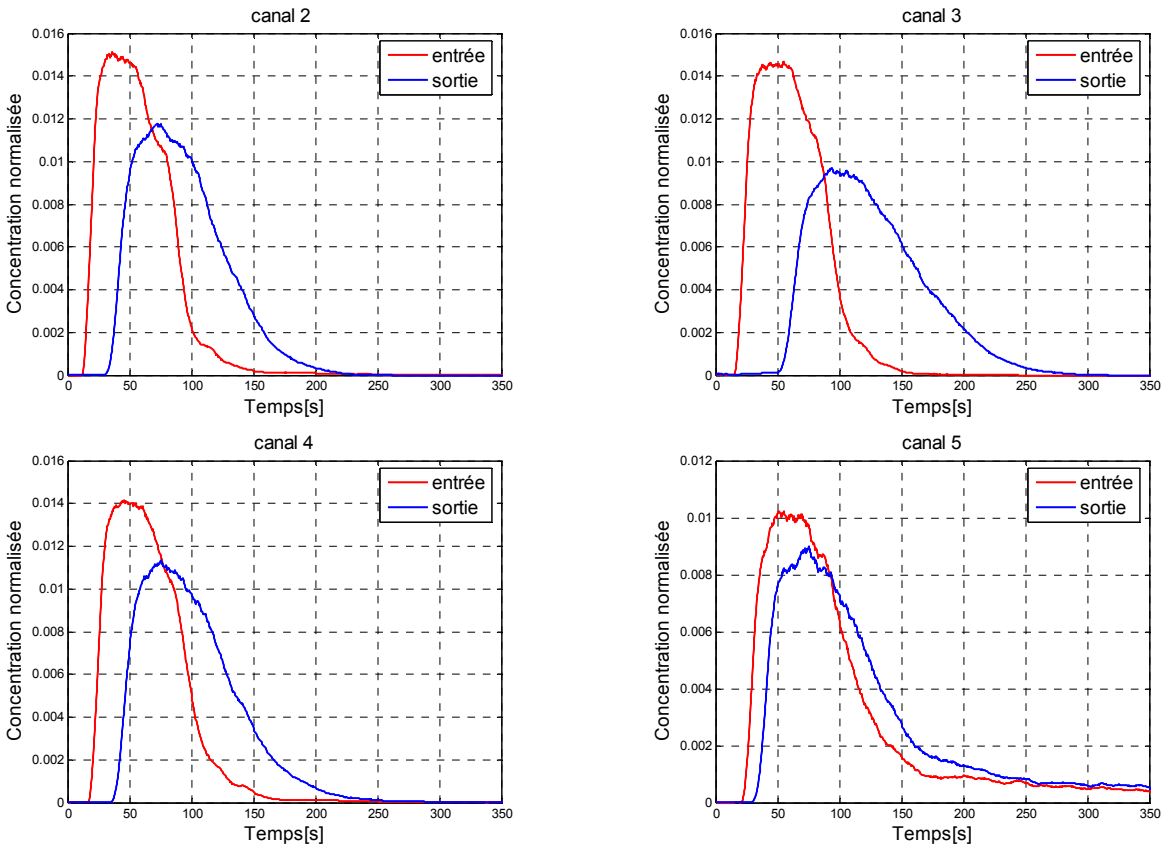


Figure III.7. *Courbes de passage du traceur pour les différents microcanaux en parallèle de la plaque B en écoulement laminaire Re = 4.*

Les résultats de simulation montrent qu'une telle structure présente, en régime laminaire et isotherme, une maldistribution importante à cause du faible rapport de résistances mis en jeu. Les résultats expérimentaux confirment la présence de cette maldistribution pour un tel rapport.

La distribution des débits sur les microcanaux parallèles est représentée sur la *Figure III.8*. Comme il a été prédit par la simulation numérique, une maldistribution très prononcée est retrouvée expérimentalement. Les débits traversant les canaux au milieu du réseau sont plus faibles que ceux traversant les canaux aux extrémités.

Aux très faibles nombres de Reynolds, la forme symétrique de la distribution des débits est aussi observée expérimentalement. Cependant, dès que le nombre de Reynolds avoisine 20, une déformation dans la symétrie de la distribution apparaît. Le débit traversant le premier canal se trouve réduit par rapport à celui traversant le dernier canal. Une telle distribution des débits rappelle celle obtenue en tenant compte des pertes de charge singulières dans la modélisation de l'écoulement. Cependant, cette distribution non symétrique du fluide a été numériquement observée pour des nombres de Reynolds de l'ordre de quelques centaines tandis qu'elle apparaît déjà pour des Reynolds avoisinant 20.

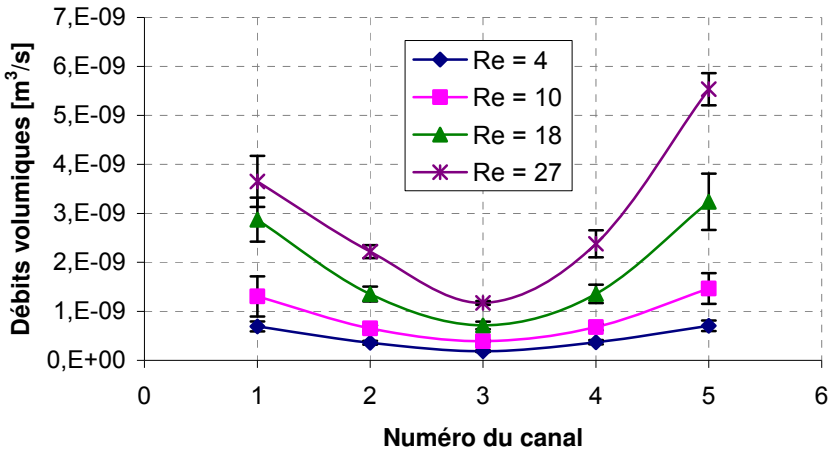


Figure III.8. *Distribution du fluide sur les 5 microcanaux en parallèle dans la plaque B, obtenue pour différents nombres de Reynolds.*

Par ailleurs, pour les mêmes conditions géométriques de cette plaque, la simulation numérique n'a pas montré d'effet de singularité. Cette sous-estimation des singularités par le modèle numérique peut être liée, en partie, aux valeurs des coefficients décrivant les pertes de charges singulières qui ne sont pas adaptées aux petites dimensions. On ne peut cependant pas exclure le fait que des erreurs expérimentales peuvent être aussi une cause de cette différence. Néanmoins, la reproductibilité des résultats est assez bonne sur cette plaque et l'effet de ces singularités reste marqué même en balayant toutes les barres d'incertitudes calculées sur chaque valeur du débit.

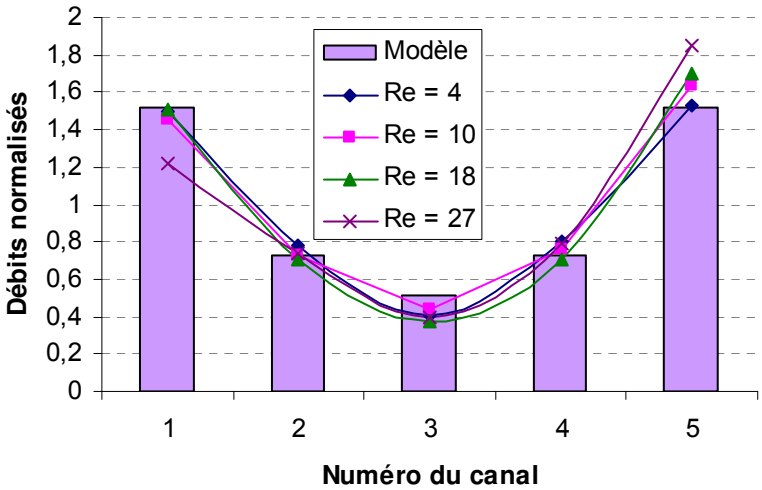


Figure III.9. *Comparaison des distributions du fluide normalisées par la moyenne correspondante.*

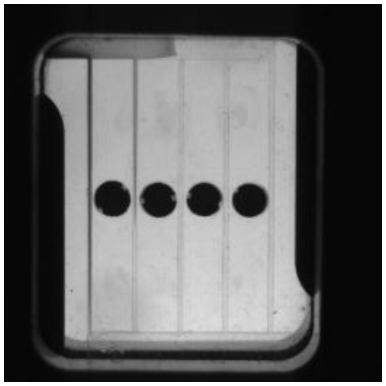
Un autre résultat qu'on peut voir directement sur la courbe (*Figure III.9*) est qu'aux très faibles nombres de Reynolds la distribution des débits normalisés par le débit moyen n'est pas trop affectée par la variation des débits à l'entrée de la plaque. Des déviations légères sont observées. Ces dernières peuvent être associées aux effets des singularités ainsi qu'aux erreurs expérimentales.

Sur le plan quantitatif, les valeurs des débits calculés expérimentalement pour ce réacteur ne sont pas très éloignées de celles estimées par la simulation numérique. En effet, le débit volumique total calculé expérimentalement en additionnant les débits traversant les canaux parallèles, présente un écart global de 10% maximum (cas de $Re = 27$) par rapport au débit réel d'alimentation.

Les résultats expérimentaux sont en accord qualitatif et quantitatif pour cette plaque. L'accord qualitatif provient du fait que cette plaque présente un très faible rapport de résistances internes ($r = 2.5$) et donc une forte maldistribution qui l'emporte sur les erreurs expérimentales. L'accord quantitatif est cependant lié à la longueur des canaux en parallèle qui permet de bien distinguer entre les signaux à l'entrée et à la sortie du canal. C'est la raison pour laquelle la reproductibilité des résultats est meilleure pour les faibles nombres de Reynolds et plus particulièrement pour les canaux situés au centre du réseau où les débits sont généralement les plus faibles. De plus, les faibles dimensions des conduites de distribution et de collecte défavorisent la présence de volumes morts dans cette plaque, ce qui diminue la traînée des signaux.

III.2.4.3. Distribution du fluide sur la plaque C

La *Figure III.10* illustre la répartition des débits volumiques circulant dans les microcanaux en parallèle de la structure C ainsi que les valeurs issues de la simulation numérique correspondante. Le nombre de Reynolds considéré à l'entrée de la plaque est $Re = 2$ et l'écart de temps entre deux images successives est fixé à 0,4 s. La reproductibilité des résultats est représentée par les barres d'incertitudes estimées en répétant trois fois la même expérience dans les mêmes conditions opératoires.



Ecoulement à travers la plaque C

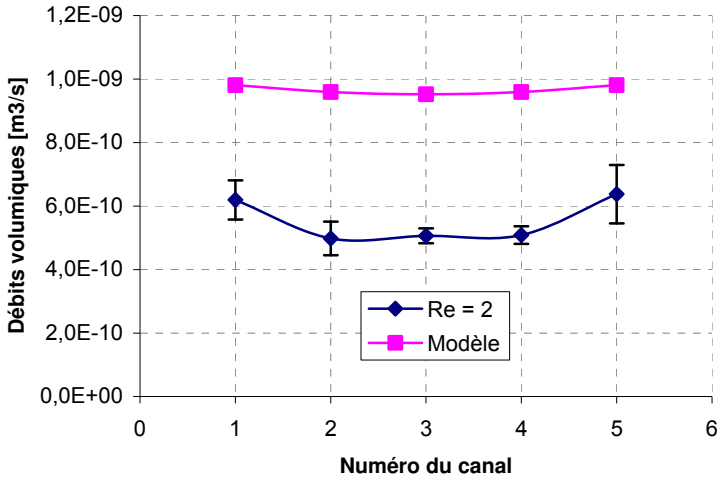


Figure III.10. *Distribution des débits volumiques obtenue pour la plaque C et des débits simulés par le modèle résistif.*

La structure *C* présente à la fois un faible nombre de canaux en parallèle et un rapport de résistances hydrodynamiques élevé (*Tableau III.2*). La maldistribution entre les débits calculés numériquement est relativement faible. La distribution déterminée expérimentalement révèle qualitativement une allure similaire à celle de la distribution simulée numériquement. En effet, pour le faible nombre de Reynolds employé, la distribution de fluide s'approche d'une distribution uniforme en raison des conditions géométriques considérées. Par ailleurs, on peut voir que, sur le plan quantitatif, les débits estimés expérimentalement sont sous estimés par rapport à ceux estimés numériquement. L'écart entre le débit total réellement imposé et le débit total déterminé expérimentalement est d'environ 40%.

Incertitude sur le diamètre des microcanaux

Une erreur minime sur la dimension caractéristique du canal, sans importance dans le calcul de la maldsitribution, conduit assez souvent à un écart important dans le calcul du débit total introduit dans le réseau et se traduirait par une surévaluation ou sous-évaluation de ce dernier.

Pour illustrer l'impact d'une éventuelle erreur sur le diamètre des microcanaux, on compare sur la figure ci-après les différentes distributions expérimentales du fluide, corrigées en faisant varier le diamètre hydraulique des microcanaux autour de sa valeur théorique (D_{h1} *= 0,5 mm)*. La variation du diamètre hydraulique peut être liée à une variation de l'épaisseur et/ou de la largeur du canal.

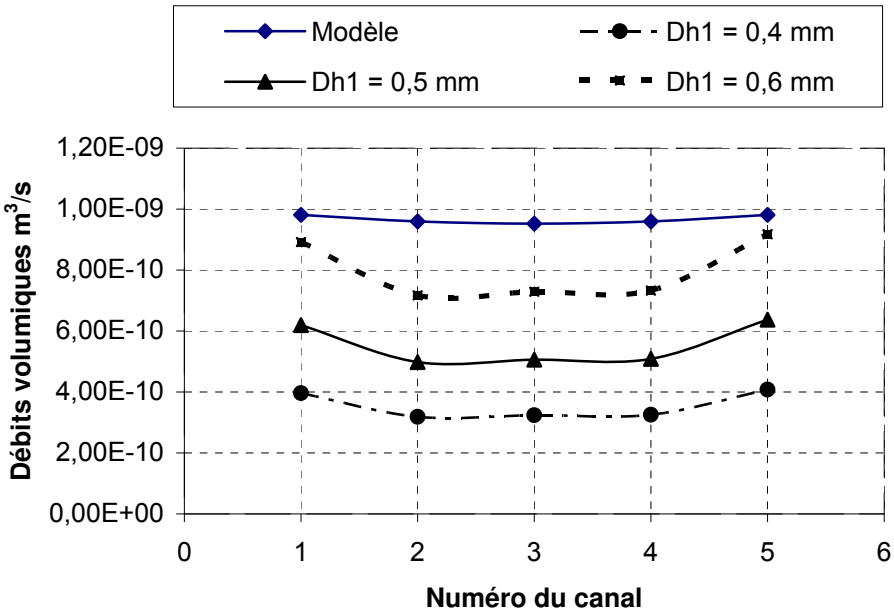


Figure III.11. *Impact d'une variation du diamètre hydraulique sur la distribution expérimentale des débits volumiques.*

Comme on peut le remarquer sur la *Figure III.11*, une faible variation du diamètre hydraulique des microcanaux peut engendrer des écarts importants dans les valeurs des débits volumiques. L'écart sur le débit total est d'environ *60%* en considérant un $D_{h1} = 0.4\ mm$ et peut être réduit jusqu'à *17%* en considérant un $D_{h1} = 0.6\ mm$. La distribution du modèle reportée sur la *Figure III.11* est relative à un diamètre $D_{h1} = 0,5\ mm$. Une éventuelle variation dans le diamètre des microcanaux entraîne aussi une variation dans la courbe de distribution des débits. En effet, une augmentation du diamètre induit une diminution du rapport *r* et donc une augmentation de la maldistribution. A contrario, une diminution du diamètre hydraulique induit une augmentation du rapport *r* et en conséquence, une amélioration de la distribution du fluide. Cependant, les dimensions importantes des chambres de distribution et de collecte ainsi que le faible nombre de canaux considérés pour cette plaque font que la distribution numérique n'est pas très perturbée par une telle modification du diamètre.

En résumé, il ressort de cette comparaison que l'utilisation d'un diamètre hydraulique d'environ 0,7 mm permettrait de faire correspondre le débit total introduit expérimentalement et les débits issus du traitement d'images. Un tel écart sur le diamètre peut, en partie, s'expliquer par la méthode de fabrication des réacteurs. Cependant, toutes les autres sources d'erreurs expérimentales sont aussi à l'origine de cet écart. De plus, la rugosité des parois bien que son effet n'ait pas été étudié, peut aussi représenter un facteur important qu'il faudrait considérer dans les simulations numériques.

III.2.3.4. Comparaison des configurations

Comme il a été prédit précédemment par le modèle résistif, l'équi-répartition des débits est principalement contrôlée par le rapport de résistances internes *r* et le nombre de canaux mis en parallèle. En tenant compte des incertitudes expérimentales, les résultats sur le plan qualitatif sont très proches des prédictions numériques pour l'ensemble des configurations étudiées. Cependant, sur le plan quantitatif, la configuration *B* présente les plus faibles écarts par rapport aux valeurs prévues par le modèle. La quantification des débits volumiques dans les cas des autres configurations (*A* et *C*) présente des écarts relativement importants. Plusieurs raisons peuvent en être la cause.

Une des principales raisons est liée à la relation entre l'intensité du gris et la concentration de traceur. En réalité cette concentration est surfacique et ne tient pas compte de l'épaisseur du canal. D'autre part, les incertitudes expérimentales sont différentes d'une configuration à une autre du fait que les objets structurés sont composés de plaques transparentes de différentes épaisseurs, ceci peut modifier différemment les valeurs de concentrations du traceur et donc la quantification des débits. Il convient par ailleurs de signaler que les débits volumiques sont calculés par rapport aux sections théoriques des canaux. Des incertitudes sur la valeur réelle de cette section peuvent aussi expliquer les écarts entre la somme des débits déterminés expérimentalement dans chaque canal en parallèle et le débit total imposé à l'entrée de chaque configuration. Des erreurs dues à la déformation du matériau dans le temps ne sont cependant pas exclues. En effet, la circulation excessive de l'eau dans les plaques transparentes peut modifier l'état de surface de l'altuglas et modifier la section du passage du fluide. Ces erreurs peuvent être levées en estimant le vrai diamètre des canaux après fonctionnement.

Néanmoins, le principal avantage de cette méthode expérimentale, est la possibilité de contrôler l'avancement du traceur au niveau du canal lui-même sans aucune perturbation de l'écoulement. De plus, en considérant pour chaque canal deux points de mesures (entrée et sortie), les erreurs expérimentales qui perturbent les signaux de mesures peuvent être neutralisées.

Dispersion axiale

A partir des visualisations de l'écoulement effectuées à l'aide de la caméra rapide et du système de *μPIV*, on a pu remarquer qu'un écoulement laminaire est présent dans l'ensemble de la plaque. L'absence de turbulences devrait limiter les effets de dispersion à la diffusion moléculaire. Cependant, le profil laminaire de vitesse peut aussi contribuer à la création de la dispersion dans le canal considéré.

En effet, la dispersion des particules d'un fluide en écoulement laminaire dans une conduite, peut être causée, d'une part, par le profil radial de la vitesse et, d'autre part, par la diffusion moléculaire (Villermaux, 1993). La dispersion axiale, mettant en jeu la contribution de ces deux causes de dispersion, est représentée par la relation de Taylor et Aris comme suite :

$$D_A = D_m + \frac{U^2 D^2}{192.D_m} \qquad \text{(III.11)}$$

avec U qui représente la vitesse moyenne du fluide, caractérisé par un coefficient de diffusion moléculaire D_m et circulant dans un canal de diamètre D.

Sur les *Figures III.12* et *III.13* sont portées les dispersions axiales calculées pour les réacteurs *B* et *C* à l'aide de l'équation (III.7). Les valeurs enregistrées représentent la moyenne calculée pour les différentes mesures répétitives, effectuées pour chaque nombre de Reynolds. Les valeurs de la variance obtenues sont parfois non significatives, notamment lorsque les courbes de concentration du traceur sont très perturbées ou lorsqu'elles présentent une traînée importante. Ces valeurs erronées issues des fluctuations du signal ne sont pas prises en compte dans le calcul de la dispersion moyenne. On ne représente sur les *Figure III.12* et *III.13* que les valeurs positives de la variance qui sont physiquement significatives.

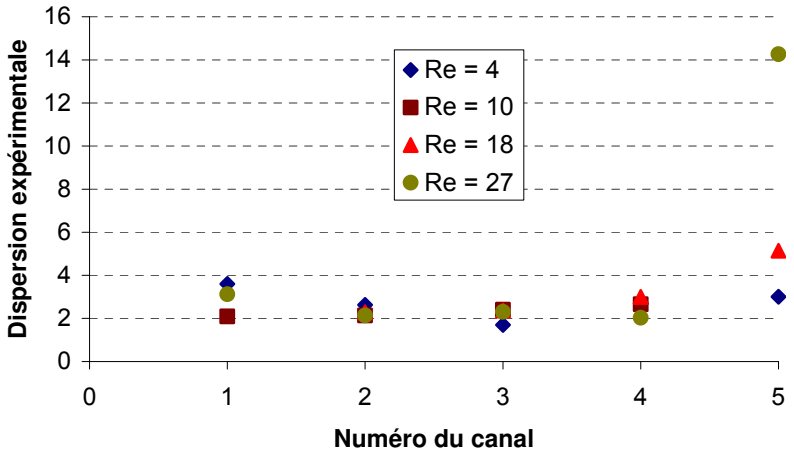


Figure III.12. *Dispersion expérimentale* $\frac{4\sigma}{\tau_s}$ *au niveau des microcanaux en parallèle de la plaque B à différents nombres de Reynolds.*

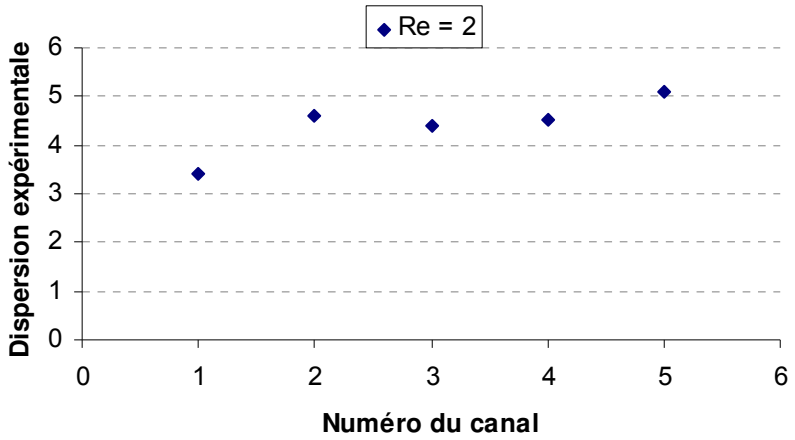


Figure III.13. *Dispersion expérimentale* $\frac{4\sigma}{\tau_s}$ *au niveau des microcanaux en parallèle de la plaque C pour un nombre de Reynolds = 2.*

Bien que la dispersion calculée pour ces conditions expérimentales ne soit pas essentiellement causée par la diffusion moléculaire, elle varie légèrement avec le débit volumique imposé. Cette constatation est principalement retrouvée pour les canaux situés aux centres des plaques *B* et *C*. Dans ces positions, les débits d'écoulement sont les plus faibles et les moins perturbés. Les valeurs de la dispersion fluctuent autour de 3 pour le réacteur B et avoisinent 4,5 pour le réacteur C. On précise tout de même que le signal d'entrée présente lui aussi une dispersion au niveau de l'entrée du canal. Cette dernière est liée à la nature de l'écoulement dans le parcours situé entre l'entrée du réacteur et l'entrée du canal.

Pour les faibles nombres de Reynolds appliqués dans ce cas d'étude et en considérant l'écoulement de l'eau dans les microcanaux de 500 μm de diamètre, la contribution de la dispersion due au profil laminaire de vitesses est plus importante que de celle causée par la diffusion moléculaire $D_m = 10^{-9}\ m^2.s^{-1}$.
Considérant à titre d'exemple le canal numéro 3 de la plaque B où la dispersion expérimentale est égale à 2,3 pour un nombre de Reynolds Re = 27 (ce nombre de Reynolds correspond à une vitesse U = $4{,}7.10^{-3}$ m/s dans ce canal). Pour ce canal de diamètre D = 500 µm et de longueur L = 5 cm, la dispersion axiale calculée à l'aide de la relation de Taylor et Aris (équation (III.11)) est:
$D_A = 10^{-9} + 2{,}9.10^{-5}$, c'est donc la dispersion liée au profil laminaire qui est prépondérante dans ce cas.

3. Conclusion

Une méthode expérimentale simple pour la détermination des distributions internes du fluide a été mise au point dans ce chapitre. Différentes configurations ont été analysées hydrodynamiquement et la distribution des débits volumiques a été calculée à partir des courbes de distribution des concentrations. Ainsi, il a été possible de mettre l'accent sur l'effet du rapport de résistances internes sur la distribution du fluide pour des configurations de canaux en parallèle.

Des limitations du point de vue de la quantification des débits volumiques ont cependant été relevées. Elles sont reliées aux erreurs expérimentales issues de la capture et du traitement des images ainsi qu'aux défauts de fabrication des plaques. Ces limitations peuvent toutefois être résolues en améliorant les moyens techniques permettant de réduire davantage les différentes incertitudes expérimentales. Des méthodes plus élaborées sont toutefois nécessaires pour une quantification plus précise des écoulements en micro-conduites ainsi que pour la caractérisation des réseaux de canaux disposés sur trois dimensions.

Chapitre IV

Structuration multi-échelle des échangeurs thermiques

Le présent chapitre aborde une analyse thermique des configurations multi-échelles. On essaie de synthétiser les informations et les relations applicables pour l'étude d'un échange thermique entre une structure multi-échelle à température de paroi constante et un fluide en écoulement laminaire. L'influence de la structuration des flux sur l'efficacité de l'échangeur est simulée en se basant sur le calcul des Nombres d'Unité de Transfert (*NUT)*. Les impacts de la structuration des échangeurs sur le comportement thermo-hydrodynamique du fluide ainsi que ceux des contraintes de conception sont discutés.
L'opération thermique proprement dite est fort simple puisqu'il s'agit d'un échange convectif entre le fluide et la paroi isotherme. Néanmoins, la complexité des configurations étudiées fait que dans la plupart des cas, cette analyse thermique doit être accompagnée d'un certain nombre d'hypothèses et de simplifications.

IV.1. Echangeurs de chaleurs microstructurés

Les technologies des microéchangeurs de chaleur suscitent un intérêt croissant de par la forte potentialité de leurs applications dans les procédés. Les microéchangeurs peuvent offrir un important potentiel thermique et une réduction notable des quantités des fluides caloporteurs, grâce aux surfaces spécifiques élevées présentes dans ces équipements microstructurés. En outre, un coefficient de transfert important est obtenu avec des échangeurs compacts dotés d'un faible diamètre hydraulique, aussi bien pour des écoulements monophasiques que pour des écoulements biphasiques (Rohsenow et al., Handbook of Heat Transfer). De plus, la compacité de ces équipements est très sollicitée notamment dans l'industrie automobile (climatisation automobile, batteries de condenseurs à bord,...), dans l'industrie électronique ainsi que dans plusieurs applications embarquées.

Pour des applications en génie chimique, des couplages entre les phénomènes chimiques et physiques sont à considérer dans la phase de dimensionnement de ces microéchangeurs. Les phénomènes thermiques sont souvent combinés avec des transformations chimiques dans un seul équipement microstructuré (Baier et al., 2007 ; Kim et al., 2005). Un contrôle pointu de la température doit être assuré dans chaque partie du microréacteur où la réaction pourrait se produire, afin d'atteindre les rendements réactionnels désirés. Dans le cas, par exemple, des réactions exothermiques, ces microsystèmes doivent assurer la maîtrise des transferts internes pour une évacuation rapide des flux thermiques.

Plusieurs travaux sur des échangeurs multi-échelles concernent les systèmes constructals mettant en jeu des configurations arborescentes (Chen et Cheng, 2005 ; Ghodoossi, 2005 ; Escher et al., 2008, Luo et al., 2008). Le système arborescent assure en plus de l'échange thermique, la distribution des fluides caloporteurs dans l'ensemble du réseau fluidique.

Comme il a déjà été mentionné dans les précédents chapitres, en plus de l'efficacité opérationnelle de l'équipement microstructuré, une faible puissance énergétique, un maximum de compacité et une facilité d'extrapolation sont souvent recherchés. A cet égard, les échangeurs à

réseaux multi-canaux (canaux disposés en série et en parallèle) compacts et extrapolables par numbering-up, peuvent être envisagés pour des applications industrielles.

IV.2. Dimensionnement des échangeurs microstructurés

La sûreté de l'équipement microstructuré est aussi une caractéristique exigée pour chaque application industrielle. Une surestimation ou encore une sous-estimation des quantités des flux thermiques associés à l'échangeur, peut entraîner des anomalies dans son fonctionnement (points chauds, développement de réactions parasites, emballement du réacteur, etc.), notamment lorsqu'une réaction chimique est contrôlée par cet échangeur. Plusieurs raisons d'une mauvaise estimation du comportement du microéchangeur peuvent se présenter. Elles peuvent être liées à la non prise en compte de certains phénomènes physiques intrinsèques se manifestant selon la nature de l'opération thermique effectuée. La conception géométrique de l'équipement, ses défauts de fabrication et ses tolérances sont aussi des considérations importantes à intégrer dans la phase de dimensionnement.

IV.2.1. Validité des lois classiques en micro-échelle

De nombreuses études publiées dans la littérature portent sur la vérification des lois classiques des transferts dans des microdimensions. Selon la nature de l'opération thermique ainsi que la nature du fluide mis en jeu, des effets physiques généralement négligés en macro-échelle peuvent être amplifiés dans des microdimensions. Plusieurs questions concernant la validité des lois usuelles de la thermique en micro-échelle, restent jusqu'à l'heure actuelle non résolues. La formation de la double couche électrique dans le cas d'un écoulement liquide, la conduction longitudinale et les effets de raréfaction dans le cas des gaz, sont parmi les points les plus sensibles à considérer lorsqu'il s'agit de microdimensions.

Chen et Weng (2005) ont étudié numériquement la distribution de la température entre deux plaques en parallèle à extrémités ouvertes en convection naturelle. Ils ont constaté qu'à cause de la présence de l'effet de la raréfaction et des interactions entre le fluide et la paroi, le taux de transfert thermique diminue. Pour le même type d'opération thermique, Biswal et al. (2005) ont trouvé que le nombre de Nusselt moyen croît pour des valeurs croissantes du nombre de Knudsen. Cependant, cette augmentation est moins importante pour des valeurs élevées du nombre de Rayleigh. Aux très faibles nombres de Rayleigh et pour un écoulement thermiquement établi, le nombre de Nusselt peut tendre vers 0.

Les écarts entre les lois classiques et les résultats observés dans des micro-échelles peuvent provenir aussi bien des incertitudes sur les mesures expérimentales, que de la non prise en compte de tous les phénomènes physiques dans la modélisation théorique de l'opération thermique réalisée. En effet, les hypothèses et les simplifications sont parfois nécessaires selon le type du transfert thermique étudié, ce qui peut rajouter une source d'erreur supplémentaire.

Par ailleurs, l'intégration des microéchangeurs dans un procédé et leur connectique avec les systèmes fluidiques environnants, nécessitent des moyens de contrôle automatique et une métrologie adaptée aux petites échelles. Le développement de microcapteurs non-intrusifs aussi bien pour des mesures hydrodynamiques que pour des mesures thermiques est un enjeu capital difficile à relever.

Cette difficulté technique est d'autant plus importante que l'opération de transfert couplera plusieurs phénomènes dans de très petites dimensions. Il faut donc rester dans certaines limites pour le choix des dimensions et réduire au maximum les écarts probables par rapport aux objectifs prévus pour l'équipement dimensionné.

IV.2.2. Influence des propriétés physiques des fluides dans un échangeur

Le comportement thermique peut être différent selon les propriétés thermophysiques du fluide employé. Lorsqu'il s'agit d'un liquide, la viscosité décroît avec la température, ce qui tend à augmenter le débit dans le canal correspondant et par conséquent, augmenter le coefficient de transfert de chaleur. A contrario, la viscosité croît avec la température pour les gaz et le débit décroît ainsi que le coefficient de transfert. Néanmoins, la conductivité thermique croît avec la température en contre-partie, mais ceci ne compense pas le premier effet. Pour certains cas (conduites très longues, conduites déformées, etc.), un changement du régime d'écoulement peut se produire, ce qui affecte directement le transfert thermique dans l'équipement (Techniques de l'ingénieur**)**.

Pour des fluides où la viscosité est très élevée, l'effet de la dissipation visqueuse sur les champs de température peut engendrer une importante modification de la valeur asymptotique du nombre de Nusselt. Ce dernier peut atteindre une valeur de 9,6 au lieu de 3,6 (Ou et Cheng, 1974 ; Magyari et Barletta, 2007). Pour un fluide dont la viscosité est fortement dépendante de la température, le champ de vitesse parabolique décrit par la loi de Poiseuille n'obéit plus à cette loi. Il devient nécessaire de résoudre le problème thermique en combinant les bilans de quantité de mouvement et d'énergie.

Des solutions analytiques sous forme de séries de puissances pour décrire le modèle de viscosité dans le cas de la convection laminaire forcée dans des conduites cylindriques et isothermes sont présentées dans les travaux de Magyari et Barletta (2007). Peng et Ling (2008) ont analysé expérimentalement et analytiquement un échangeur en aluminium en employant une série d'huiles avec différentes viscosités et de l'air à courants croisés. La distribution de la température interne ainsi que les nombres de Nusselt locaux sont numériquement déterminés en utilisant le facteur de transfert thermique de Colburn et le coefficient de frottement pour des nombres de Reynolds de l'huile compris entre 10 et 200. Il a été ainsi constaté dans ces conditions que les deux facteurs, thermique et frictionnel, diminuent en augmentant le nombre de Reynolds et que le facteur frictionnel est indépendant de la température pour cette gamme de Reynolds.

IV.2.3. Influence de la géométrie de l'échangeur sur son comportement hydro-thermique

Le transfert de chaleur dans des échangeurs thermiques est en corrélation directe avec les variables géométriques associées à l'équipement. L'ensemble des lois décrivant les caractéristiques thermiques est en partie régi par des nombres adimensionnels incluant des paramètres géométriques. Aux petites échelles, l'influence de la géométrie est amplifiée et doit inclure les effets des parois définissant l'échangeur.

Xie et al. (2008) ont étudié numériquement l'influence de la dimension caractéristique des canaux, de l'épaisseur des parois de séparation et de la vitesse initiale d'alimentation sur la perte de charge totale résultante dans l'échangeur, sur la résistance thermique des flux et sur le rendement thermique maximum. Les résultats indiquent que des canaux fins et profonds avec une faible épaisseur de la paroi supérieure et une faible paroi séparant les canaux peuvent améliorer les rendements thermiques avec une perte de charge acceptable.

Prabhakara Rao et al. (2002) ont réalisé une étude paramétrique sur un échangeur en plaque et ont montré que les effets des paramètres comme la capacité calorifique du fluide, la configuration interne du fluide ainsi que la géométrie de la plaque sont considérablement différents quand un débit variable et un coefficient thermique dépendant du débit correspondant, sont considérés. Toutes ces études montrent l'important impact de la conception géométrique sur le comportement thermo-hydraulique des équipements dimensionnés.

Il est généralement supposé que le fluide est uniformément distribué sur l'ensemble des canaux constituant l'échangeur, ce qui engendre souvent des surestimations de l'efficacité de l'échangeur. De nombreuses études ont été consacrées à l'examen de la maldistribution dans les objets microstructurés (cf. chapitre I) dans le but de concevoir des procédés adéquats pour différentes applications comme les réacteurs électrochimiques nécessitant des échangeurs intégrés, les microréacteurs pour des réactions fortement exothermiques et les microéchangeurs pour les systèmes embarqués.

IV.3. Modélisation thermique des échangeurs en réseau

La présente étude comporte deux volets, le premier concerne une analyse thermique des réseaux élémentaires à deux échelles sous différentes contraintes géométriques (surface d'échange, nombre de canaux en parallèle, rapport de résistances hydrodynamique, etc.) et opératoires (en tenant compte de la variation des propriété physiques, des nombres de Nusselt internes, etc.). Le deuxième volet est relatif à l'examen du comportement thermique du fluide dans des structures à trois et à quatre échelles successivement.

Dans cette dernière partie, les résultats sont limités à quelques exemples de contraintes à cause de la complexité des configurations multi-échelles. L'approche envisagée pour réaliser cette étude thermique est essentiellement basée sur le calcul des nombres d'unités de transfert

dans chaque conduite composant le réseau microstructuré dont la maille élémentaire est représentée sur la *Figure IV.1*.

IV.3.1. Opération de transfert thermique

Il a été délibérément choisi de travailler avec des échangeurs multi-canaux à paroi isotherme. La transposition de l'analyse thermique à d'autres type d'opération n'est naturellement pas évidente. Cependant, l'identification des paramètres agissant sur cette opération thermique, permet toutefois de prévoir les géométries dont les efficacités thermiques et hydrauliques sont les plus sensibles aux contraintes de dimensionnement.

On s'intéresse dans cette partie aux aspects thermiques dans des réseaux multi-canaux présentés dans le chapitre précédent. On essaye d'estimer des grandeurs globales (NUT, coefficient de transfert, efficacité...) à partir d'un calcul successif des grandeurs locales (T_{canal}, NUT_{canal}) en régime laminaire et à température de paroi constante. Les caractéristiques thermiques d'un réseau à deux échelles sont présentées et les résultats concernant l'efficacité thermique, le nombre total d'unités de transfert et le coefficient de transfert global, sont discutés.

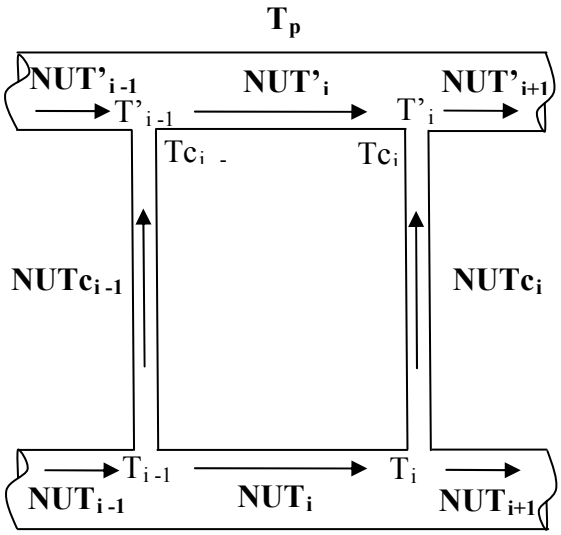


Figure IV.1. *Schéma représentant la maille élémentaire pour la modélisation des transferts thermiques dans un réseau à deux échelles.*

Une configuration à deux échelles représente ici un échangeur élémentaire dont le schéma thermique équivalent est représenté sur la *Figure IV.1*. Sur cette figure, T_i et T'_i représentent respectivement la température à la sortie de la i^{eme} portion de distributeur et du collecteur et Tc_i la température à la sortie de $i^{éme}$ microcanal en parallèle.

IV.3.2. Hypothèses simplificatrices

La diversité et la complexité géométrique des réseaux de microcanaux qu'il est possible d'aborder ici, obligent à faire fréquemment appel à des approximations complémentaires. On se propose de construire un modèle simple à partir d'un certain nombre d'hypothèses citées ci-après:
- l'écoulement est laminaire et complètement développé en absence d'effet de singularités.
- les températures de fluide à l'entrée et à l'intérieur de l'échangeur sont indépendantes du temps et le transfert s'effectue le long de l'échangeur sans changement de phase.
- les propriétés thermo-physiques du fluide implicitement utilisées dans les nombres adimensionnels sont supposées constantes, en particulier indépendantes de la température. Néanmoins, la viscosité du fluide est la plus importante propriété physique susceptible de varier de manière substantielle en fonction de la température.

Les variations de viscosité peuvent conduire à un changement du régime d'écoulement. Un écoulement turbulent à l'entrée peut devenir laminaire vers la sortie si la viscosité croît suffisamment ou inversement. Ce fait a comme conséquence une modification du coefficient d'échange local. L'effet de la température sur la viscosité du fluide est pris en compte par la suite dans le cas d'une configuration à deux échelles (paragraphe 4.2). Notons que la masse volumique est aussi susceptible de varier de façon appréciable avec la température, notamment pour les gaz.

L'utilisation de relations appropriées de la thermique nécessite de connaître au préalable la vitesse du fluide dans les différentes portions de la configuration. Ainsi, en se basant sur ces hypothèses, le modèle hydrodynamique résistif est dans ce cas applicable et les résultats de la partie hydrodynamique sont en partie utilisés.

IV.3.3. Equations associées à l'analyse thermique

Des canaux avec un diamètre de l'ordre du millimètre sont considérés dans les différentes configurations étudiées. Par conséquent, les corrélations décrivant les transferts thermiques en macro-échelle sont appliquées le long de cette étude.

Le nombre d'unités de transfert *NUT* dans une conduite élémentaire peut être interprété comme le rapport entre le temps de passage dans la conduite et le temps caractéristique de transfert considéré. Les nombres d'unité de transfert partiels, associés à chaque conduite élémentaire de la *Figure IV.1,* sont calculés à l'aide des relations suivantes:

$$NUT_i = \frac{\lambda.Nu_i.\pi.L_2}{\rho.C_p Q_i} \qquad \text{(IV.1.1)}$$

$$NUTc_i = \frac{\lambda.Nuc_i.\pi.L_1}{\rho.C_p q_i} \qquad \text{(IV.1.2)}$$

$$NUT'_i = \frac{\lambda.Nu'_i.\pi.L_2}{\rho.C_p Q'_i} \quad \text{(IV.1.3)}$$

NUT_i, $NUTc_i$ et NUT_i' correspondent respectivement aux nombres d'unités de transfert dans les canaux du distributeur représentant la deuxième échelle, dans les microcanaux en parallèle de la première échelle et dans les conduites symétriques du collecteur, tandis que Nu_i, Nuc_i et Nu'_i sont les nombres de Nusselt correspondants.

C_p, ρ et λ représentent respectivement, la capacité calorifique, la masse volumique et la conductivité thermique du fluide, estimées à la température moyenne entre l'entrée et la paroi de l'échangeur microstructuré.

Pour chaque canal constituant le réseau global, l'efficacité d'échange η est définie comme le rapport du flux réellement échangé entre la paroi et le fluide et le maximum d'échange thermodynamiquement possible. Ainsi pour chaque canal présent dans le système, l'efficacité thermique peut être exprimée tel que :

$$\eta_i = \frac{T_i - T_{i-1}}{T_p - T_{i-1}} = 1 - e^{-NUTi} \quad \text{(IV.2.1)}$$

$$\eta c_i = \frac{Tc_i - T_i}{T_p - T_i} = 1 - e^{-NUTci} \quad \text{(IV.2.2)}$$

$$\eta'_i = \frac{T_i' - T'_{i-1}}{T_p - T'_{i-1}} = 1 - e^{-NUTi'} \quad \text{(IV.2.3)}$$

En outre, les températures d'entrée dans les sections du collecteur doivent être recalculées comme suit pour tenir compte du mélange des fluides en sortie de canal :

$$T_i' = \frac{q_i T_i + Q'_{i-1} T'_{i-1}}{q_i + Q'_{i-1}} \quad \text{(IV.3)}$$

avec $i = 1,n$.

Longueur d'établissement et nombre de Nusselt

La longueur d'établissement hydrodynamique L_{hyd} peut être reliée au nombre de Reynolds par la relation suivante:

$$L_{hyd} = 0{,}05.D_{canal}.Re_{canal} \quad \text{(IV.4)}$$

Le nombre de Nusselt local dépend de la distance mesurée depuis l'entrée du canal considéré et est ensuite uniforme dans la zone établie. Pour un écoulement turbulent, la distance nécessaire à l'établissement du régime décroît avec le nombre de Reynolds pour atteindre des valeurs faibles souvent négligées sauf pour les canalisations courtes devant leur diamètre. Bien au contraire, cette distance croît avec le nombre de Reynolds en régime laminaire.

Dans le cas d'un écoulement laminaire, hydrodynamiquement établi et thermiquement en cours de développement, la longueur d'établissement thermique L_{ther} peut être estimée dans un canal circulaire à température de paroi constante, à partir de la relation suivante (Midoux, 1993) :

$$L_{ther} = 0{,}05.D_{canal}.Re_{canal}.Pr_{canal} \qquad \text{(IV.5)}$$

Cette longueur d'établissement est faible devant la longueur totale du canal. En écoulement laminaire, la valeur asymptotique depuis l'entrée du tube est très rapidement atteinte et est fréquemment utilisée. Pour les fluides usuels pour lesquels le nombre de Prandtl est voisin ou supérieur à l'unité, le nombre de Nusselt est insensible aux différentes conditions thermiques imposées à la paroi quand le régime est turbulent. En régime laminaire par contre, il en dépend notablement. L'impact des effets d'entrée sur le comportement thermique des réseaux de canaux sera détaillé au paragraphe IV.5.2.

Le coefficient d'échange peut être introduit pour un fluide de propriétés physiques données circulant sous un régime d'écoulement donné, dans une géométrie donnée. Le flux d'échange thermique dépend essentiellement de ce coefficient d'échange *h*, de l'écart de température entre la paroi et la température moyenne et de la surface d'échange globale A :

$$\Phi = F.\, h.A.\, \Delta T_{ml}\ (T) \qquad \text{(IV.6)}$$

La ΔT_{ml} représente la moyenne logarithmique sur les différences de température d'entrée et de sortie de l'échangeur. Dans le cas des échangeurs autres que ceux fonctionnant à contre-courant, la ΔT_{ml} est corrigée en introduisant le facteur de correction *F*. Ce facteur dépend de la nature de l'écoulement (courants croisés, à plusieurs passes, etc.). Il est toujours compris entre 0 et 1 et est déterminé à partir des abaques disponibles dans la littérature.

Le nombre de Nusselt représente l'expression adimensionnelle du coefficient d'échange. Ainsi, à partir des nombres de Nusselt, les coefficients de convection relatifs à chaque conduite peuvent être estimés successivement comme suit:

$$h_i = \frac{\lambda.Nu_i}{D_2} \qquad \text{(IV.7.1)}$$

$$hc_i = \frac{\lambda.Nuc_i}{D_1} \tag{IV.7.2}$$

$$h'_i = \frac{\lambda.Nu'_i}{D_2} \tag{IV.7.3}$$

Le calcul successif des températures internes à la sortie de chaque canal appartenant à la configuration globale conduit à la température de sortie de l'échangeur. Ceci permet de définir un nombre d'unité de transfert total comme suit:

$$NUT_t = -ln\left(1 - \frac{T'_n - T_0}{T_p - T_0}\right) \tag{IV.8}$$

où T_0 et T'_n représentent respectivement les températures à l'entrée et à la sortie de l'échangeur et T_p représente la température de la paroi supposée constante et supérieure à la température d'entrée du fluide dans le cas de cet exemple.

Pour des conduites équivalentes et en parallèle, le NUT_t est équivalent au NUT correspondant à une conduite individuelle. Lorsque les conduites ne sont pas équivalentes de point de vue répartition des débits à l'intérieur de chaque conduite individuelle (cas d'un peigne à deux niveaux), le NUT partiel serait différent pour chaque parcours reliant l'entrée à la sortie de la structure. La distribution des NUT partiels inclue dans ce cas les NUT correspondant aux différentes branches constituant le réseau global (conduites en série et en parallèle).

Pour un réseau multi-échelle, composé de canaux cylindriques (*Figure IV.3*), la surface d'échange effective globale est calculée d'une façon récursive avec l'expression suivante:

$$A_t(i) = n(i).[2A(i+1) + A_t(i-1)] \text{ , i =1, m; } \quad A_t(0) = A(1) \tag{IV.9}$$

avec $A(i)$ et $A_t(i)$ qui représentent la surface d'échange d'un canal élémentaire et la surface d'échange global au niveau de l'échelle i.

$$A(i) = \pi D_i.L_i \tag{IV.10}$$

La quantité de chaleur globale transférée de la paroi au fluide dans la totalité de l'échangeur est calculée comme suit:

$$\varphi = Q_m.C_p(T_n' - T_0) \tag{IV.11}$$

Q_m désigne le flux massique à l'entrée de l'échangeur. Le maximum de flux thermique correspond à une température de sortie égale à la température de la paroi.

Le coefficient de transfert global peut être exprimé à l'aide de l'équation (IV.12) ci dessous. Ce coefficient représente le coefficient de transfert pour une conduite équivalente présentant la même efficacité thermique, le même NUT_t et la même surface d'échange totale A_t que ceux caractérisant les réseaux multi-canaux étudiés.

$$h_t = \frac{\rho.C_p.Q.NUT_t}{A_t} \tag{IV.12}$$

Une hypothèse couramment utilisée dans le cas d'un comportement laminaire consiste à supposer que le coefficient de transfert global est indépendant du débit du fluide correspondant. Cependant, le coefficient de transfert global peut varier d'un canal à un autre et cette variation est due, d'une part, à la variation des propriétés du fluide le long de l'échangeur et, d'autre part, au développement thermique du fluide qui dépend de la longueur du canal considéré (Rohsenow et al., Handbook of Heat Transfer). Ce dernier point est examiné dans le paragraphe IV.5.2.

IV.3.4. Calcul de la perte de charge

Aux très petites échelles, l'écoulement du fluide requiert une puissance énergétique importante. Cette contrainte très importante doit être prise en compte lors du dimensionnement des échangeurs microstructurés. La puissance de pompage est en partie proportionnelle à la perte de charge par frottement, dont le calcul est détaillé dans l'analyse hydrodynamique présentée précédemment. La perte de charge correspondant à chaque structure géométrique est calculée en considérant toutes les propriétés physiques du fluide constantes et indépendantes de la température.

IV.4. Analyse thermique d'un réseau à deux échelles

Il s'agit essentiellement de déterminer des caractéristiques globales d'un échange thermique à partir des vitesses ou des débits de fluide, des propriétés thermo-physiques (masse volumique, conductivité thermique, chaleur spécifique, viscosité dynamique) ainsi que du type de transfert considéré.

Pour tous les cas comparés ci-dessous, de l'eau est introduite à une température initiale $T_0 = 283\ K$ dans un échangeur multicanaux où la température de paroi est $T_p = 350\ K$. Des configurations présentant différents paramètres géométriques sont simulées et analysées dans les mêmes conditions opératoires. Dans le cas d'une conduite de température uniforme, de diamètre D et de longueur L en régime laminaire, le nombre de Nusselt peut être estimé à partir des corrélations établies dans la littérature.

IV.4.1. Profils de température en régime établi

Dans cette partie, l'écoulement est supposé hydrodynamiquement et thermiquement établi. On peut simplifier les calculs en supposant un nombre de Nusselt constant ($Nu = 3,66$ pour les liquides (Kays et London, 1984)) tout en veillant à ce que le régime d'écoulement soit toujours laminaire et établi. Le nombre de Prandtl pour l'eau suit la variation de la viscosité avec la température et il est compris entre *0* et *10* alors qu'il est quasiment constant pour les gaz *(Pr = 0,7)* du fait que la viscosité varie très peu avec la température et la pression. Les différentes propriétés physiques de l'eau sont reportées dans le *Tableau IV.1*.

Tableau IV.1 : *Propriétés physiques de l'eau à différentes températures (Rohsenow et al., Handbook of Heat Transfer)*

Propriété physique à T [K]	*Viscosité μ [Pa.s]*	*Capacité calorifique Cp [kJ.kg^{-1}.K^{-1}]*	*Conductivité thermique λ [W. m^{-1}.K^{-1}]*	***Masse volumique ρ [kg.m^{-3}]***
283	0.001307	4.192	0.580	999.77
313	0.000653	4.179	0.630	992.25
353	0.000355	4.196	0.670	971.60

L'éventail des variables géométriques existant est limité aux dimensions caractéristiques des canaux et au nombre d'échelles pour assurer leur connectique. Dans l'exemple examiné, le diamètre du microcanal est $D_1 = 10^{-3}$ *m*, la longueur d'un canal individuel est $L_1 = 30D_1$ et la longueur de la portion du distributeur séparant deux microcanaux successifs est $L_2 = 10\ D_1$. Le *Tableau IV.2* présente les résultats globaux issus de la caractérisation thermique des différentes configurations lorsqu'un débit de fluide $Q_0 = 10^{-6}$ m^3.s^{-1} est introduit.

Tableau IV.2. *Caractéristiques hydro-thermiques d'un réseau à deux échelles.*

Configurations	***Md [%]***	***η_t [%]***	***h_t [W.m^{-2}.K^{-1}]***	***NUT_t***	***T'$_n$ [K]***	***A_t [m^2]***
a: n = 10, $D_2 = 1D_1$	93,98	0,53	2004,90	0,76	318,64	$1,60.10^{-3}$
b: n= 50, $D_2 = 1D_1$	99,99	0,89	1149,90	2,18	342,41	$7,80.10^{-3}$
c: n = 10, $D_2 = 5D_1$	1,06	0,58	889,33	0,88	322,09	$4,10.10^{-3}$
d: n =50, $D_2 = 5D_1$	25,23	0,99	882,45	4,34	349,13	$2,04.10^{-2}$

Les *Figures IV.2a, IV.2b, IV.2c* et *IV.2d* présentent les distributions internes de températures dans les distributeurs, les sorties des microcanaux parallèles et les collecteurs correspondants et ce pour chacune des différentes configurations examinées (*Tableau IV.2*). La distribution de fluide pour chaque configuration est estimée pour des propriétés physiques de fluide constantes à une température moyenne $T = 313\ K$.

L'analyse hydrodynamique, déjà réalisée dans la première partie de l'étude, illustre que l'uniformité de la distribution de fluide est en corrélation directe avec le rapport de résistances internes *r* et le nombre de canaux mis en parallèle. Par conséquent, pour un nombre élevé de canaux en parallèle et pour un faible rapport de résistances internes (configuration b), la maldistribution des flux est très prononcée ce qui implique que les microcanaux situés au centre du réseau présentent les plus faibles débits de fluide comparés à ceux situés aux extrémités.

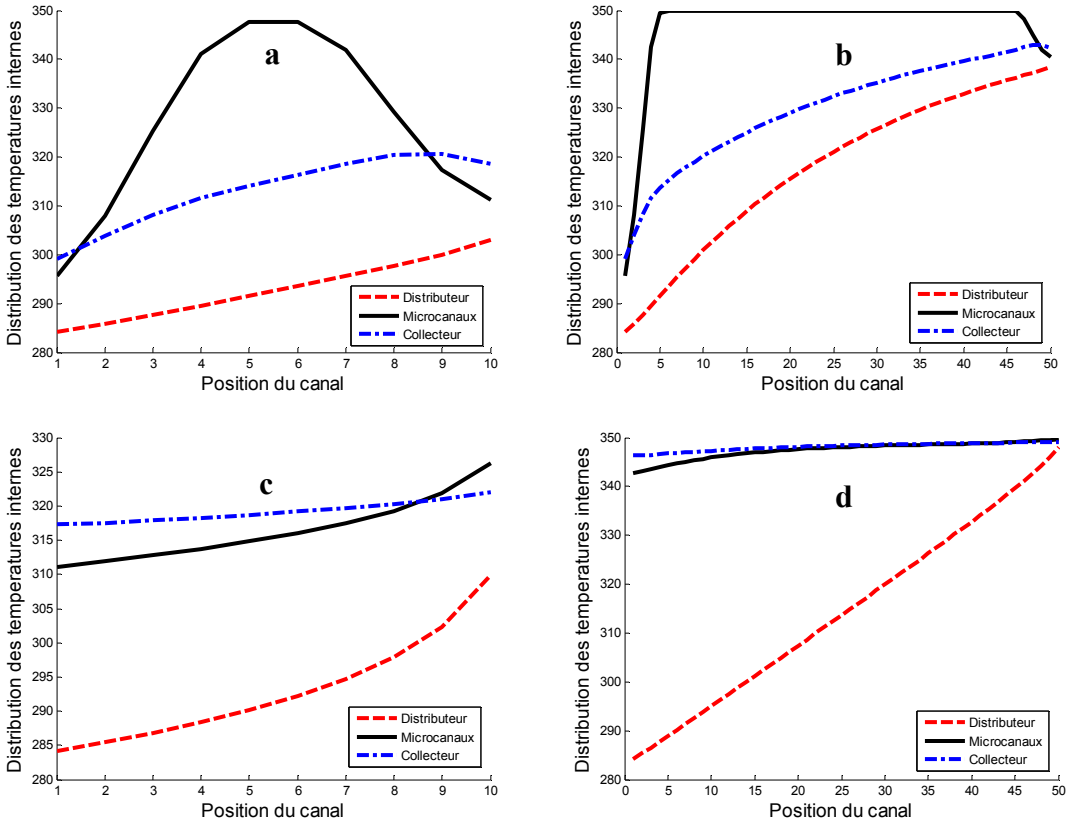


Figure IV.2. *Distribution des températures internes dans les configurations a, b, c, d, le long du distributeur, en sortie des microcanaux et le long du collecteur.*

L'analyse thermique montre que lorsqu'une importante maldistribution de fluide est présente (*Figure IV.2b*), l'efficacité peut rester relativement importante. En effet, dans ce cas, il existe une compensation entre le fluide sortant des canaux au milieu du réseau et le fluide sortant des canaux de l'extrémité. Ceci est lié aux possibilités de mélange réalisées dans les conduites de collecte. En outre, il apparaît clairement que l'augmentation de la surface d'échange induit une importante efficacité d'échange. Cependant, l'évolution du coefficient de transfert de chaleur global n'est pas directement reliée à l'évolution de la surface d'échange. Les configurations *'c'* et *'d'* présentent pratiquement le même coefficient de transfert de chaleur global, alors qu'elles présentent différentes surfaces d'échange.

IV.4.2. Impact de la Température sur la distribution de fluide

Variation de la viscosité du fluide en fonction de la température

On a supposé au début que la distribution des débits dans les différentes structures est le résultat du comportement hydrodynamique lié uniquement à la structure géométrique. En réalité, la viscosité est influencée par le changement de température ce qui devrait influencer le rapport entre les résistances internes qui ne sera plus indépendant de la viscosité dans des conditions non isothermes. Lorsqu'il s'agit d'un écoulement d'eau et pour des températures variant entre *283K* et *350K*, la variation de la viscosité est la plus sensible à la variation de la température. Vient ensuite la variation de la conductivité thermique, puis celle de la masse volumique.

Dans cette section, l'effet de la température sur la viscosité du fluide est considéré. L'écoulement laminaire est supposé établi dans le domaine de températures étudié (*Nu = 3,66*). Ainsi, la distribution interne de températures est à l'origine d'une distribution interne de la viscosité du fluide.

Procédure de calcul de la variation de viscosité

Une méthode itérative est appliquée pour déterminer la distribution des flux en tenant compte de la variation de viscosité. Les distributions initiales des débits sont calculées à viscosité constante. Les débits résultants permettent ensuite le calcul des nouvelles viscosités de fluide à l'aide de la loi d'Arrhenius, représentée par l'équation (IV.13) :

$$\mu_i(T_i) = ae^{b/T_i} \qquad \text{(IV.13)}$$

avec a = $1{,}675.10^{-6}$ et b = 1883 , qui sont des constantes estimées à partir des données sur la viscosité de l'eau à différentes températures.

L'application de ces nouvelles valeurs de viscosité dans la loi de Poiseuille, permet de calculer les nouveaux débits circulants dans les différents canaux. Ces étapes sont répétées plusieurs fois jusqu'à la convergence vers des débits stables dans l'échangeur.

La *Figure IV.3* montre que l'effet de la température sur la viscosité peut causer une perturbation dans la distribution des flux et par conséquent, une modification dans la distribution des températures. Cependant, l'effet de la variation de la viscosité reste relativement modéré comparé à celui causé par la modification de la structuration géométrique de l'échangeur. En effet, dans l'expression du rapport de résistances internes *r* (équation (II.11) dans le C*hapitre II*), la viscosité présente un effet d'ordre simple tandis qu'une variation dans le diamètre des canaux est élevée à la puissance quatre.

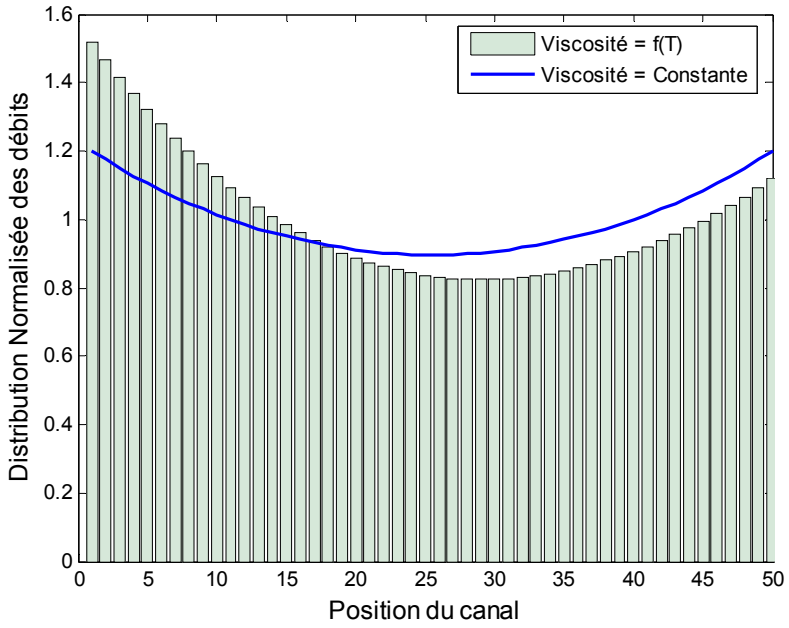


Figure IV.3. *Distribution des débits volumiques en tenant compte de la variation de la viscosité de l'eau en fonction de la température.*

Ainsi, pour limiter les calculs itératifs et se concentrer sur l'impact de la géométrie sur la performance de l'échangeur, l'impact de la température sur la viscosité est négligé dans ce qui suit. Par ailleurs, cette simplification n'affecte que peu les différentes caractéristiques thermiques du fluide. L'effet de la viscosité est très vite masqué par le mélange des sous-fluides dans la conduite de collecte.

IV.5. Analyse thermique à surface d'échange constante

Pour réaliser une analyse plus spécifique de l'effet de la structuration géométrique sur le comportement thermique des réseaux à deux échelles, la surface d'échange relative à chaque structuration géométrique est maintenue constante. Les dimensions géométriques des microcanaux en parallèle sont aussi maintenues constantes. Les coefficients de transfert individuels sont supposés indépendants des débits individuels correspondants. Ainsi, les différentes configurations d'échangeurs analysées contiennent différents nombres de microcanaux identiques avec les dimensions suivantes : $D_1 = 10^{-3}\ m$, $L_1 = 30\ D_1$ et $L_2 = 10\ D_1$. Cependant, le diamètre de la chambre de distribution et de collecte est à chaque fois modifié pour atteindre la surface d'échange imposée. Ainsi, pour une surface d'échange totale $A_t = 10^{-2}\ m^2$, le rapport de diamètre D_2/D_1 pour l'exemple examiné varie entre 1.7 et 25 et le nombre de microcanaux en parallèle n_1 entre 5 et 50.

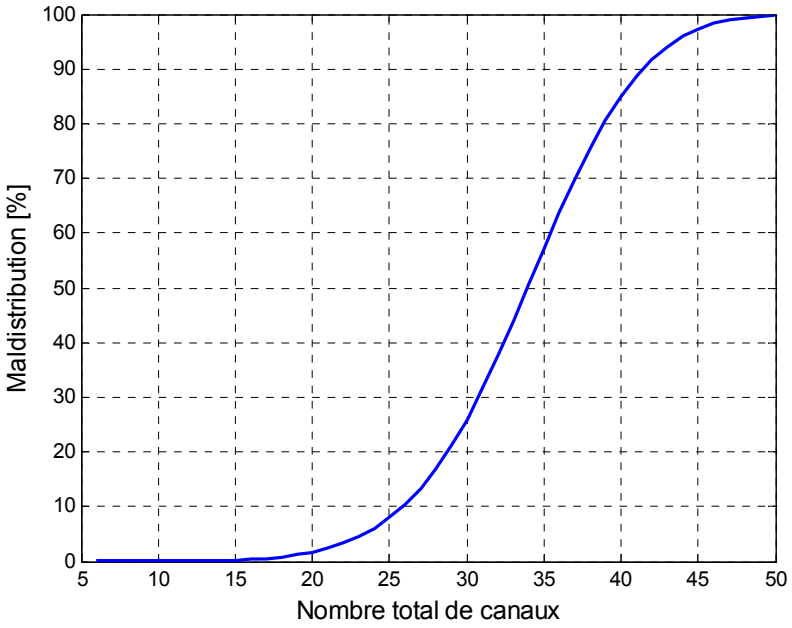


Figure IV.4. *Evolution de la maldistribution pour les différentes géométries d'échangeurs à deux échelles générées à surface d'échange constante.*

La *Figure IV.4* illustre l'évolution de la maldistribution du fluide accompagnant les configurations examinées. En raison des contraintes géométriques imposées pour la conception de ces échangeurs, les rapports de résistances internes résultants diminuent lorsque le nombre de canaux augmente. Ainsi, les premières configurations présentées dans la courbe, sont relatives aux distributions de fluide les plus uniformes comparées à celles résultantes aux nombres de canaux élevés.

IV.5.1. Caractéristiques thermiques à nombre de Nusselt constant

Le nombre de Nusselt est maintenu, dans un premier temps, constant et indépendant de toute variation du régime d'écoulement ou des propriétés physiques du fluide. L'évolution de l'efficacité globale de transfert thermique, du nombre d'unité de transfert global et du coefficient de transfert global est illustrée sur les *Figures IV.5*, *IV.6* et *IV.7* respectivement et ce pour différents débits volumiques à l'entrée.

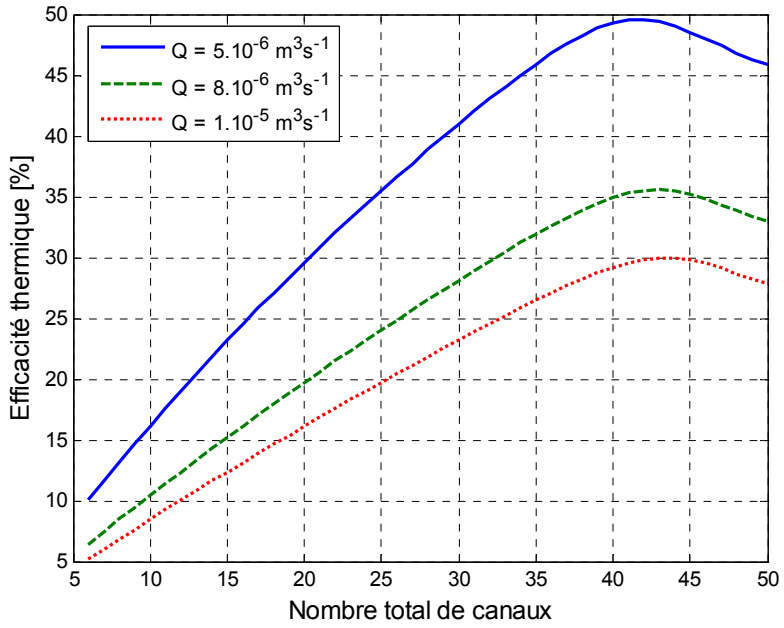


Figure IV.5. *Efficacité globale calculée pour différentes configurations à deux échelles présentant la même surface d'échange à différents débits d'entrée.*

L'analyse des différentes configurations générées sous les contraintes géométriques précédentes montre que les caractéristiques thermiques reportées sur les *Figures IV.5, IV.6* et IV.*7* révèlent l'existence de deux parties spécifiques dans la courbe, à savoir, une partie presque linéaire relative aux structures présentant une maldistribution inférieure à 60% et une autre partie non linéaire.

On peut aussi observer que les caractéristiques thermiques sont très différentes, bien que les différentes géométries analysées présentent une même surface d'échange. La première portion de la courbe correspond aux géométries possédant un faible nombre de canaux en parallèle. Pour cette raison, les dimensions des conduites de distribution et de collecte sont relativement élevées pour pouvoir répondre à la contrainte d'une surface d'échange constante. Dans cette partie de la courbe c'est le fait de subdiviser le fluide en plusieurs parties qui apporte une meilleure efficacité d'échange. Ce fait est traduit par l'existence d'une faible circulation du fluide dans les microcanaux et donc d'un temps de séjour par canal relativement élevé.

Quand le nombre de canaux commence à devenir important, il est nécessaire de diminuer les dimensions géométriques de la chambre de distribution et de collecte pour satisfaire à cette même contrainte. Il en résulte alors une maldistribution des flux dans les microcanaux. La répartition des températures n'est pas homogène dans ce cas, mais les températures à la sortie sont relativement élevées. En effet, les températures élevées liées aux temps de passage importants, résultant de la maldistribution (les températures en sortie des microcanaux du centre), sont mélangées avec les autres faibles températures (températures en sortie des canaux des extrémités) dans la conduite de collecte.

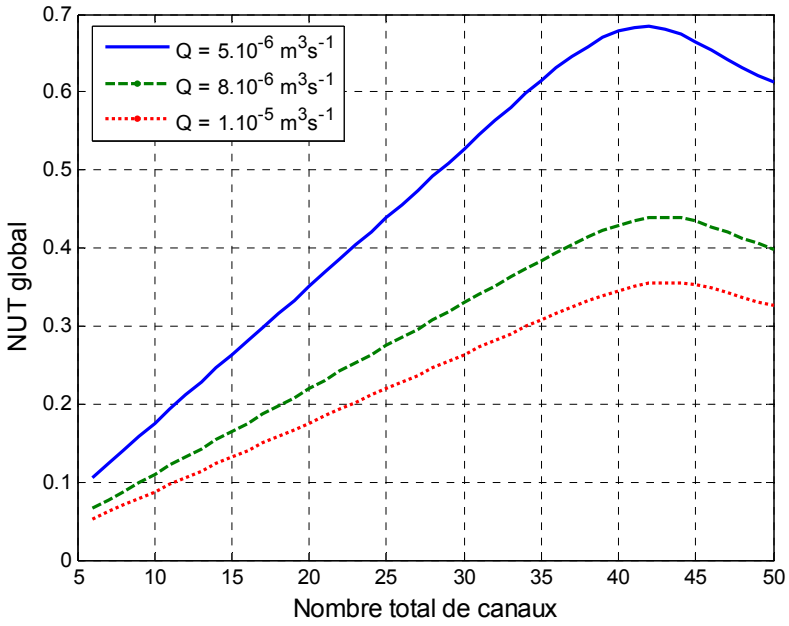


***Figure IV. 6**. Nombre d'unités de transfert global calculé pour différentes configurations à deux échelles présentant la même surface d'échange à différents débits.*

Pour les géométries dont le nombre de canaux est très élevé, la température à la sortie commence à se dégrader. Dans ce cas, la maldistribution est tellement importante que le fluide trouve des chemins préférentiels aux extrémités du circuit où le débit sera le plus élevé. Ces microcanaux perdront ainsi leur efficacité, diminueront la qualité de l'échange en se mélangeant avec les autres fluides chauds dont les proportions sont très faibles. La subdivision des flux n'est plus capable de compenser la malrépartition des températures, résultant de la maldistribution du fluide.

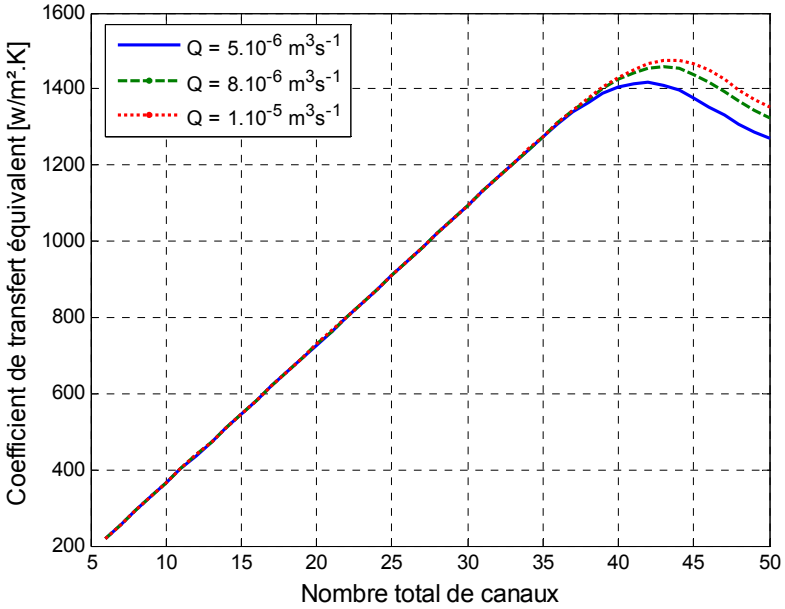


Figure IV. 7. *Coefficient de transfert de chaleur équivalent pour différentes configurations à deux échelles présentant la même surface d'échange à différents débits initiaux*

Il est aussi constaté que dans la partie linéaire de la courbe de la *Figure IV.7*, le coefficient de transfert de chaleur équivalent ne dépend pas du débit initial. Cette partie de la courbe concerne essentiellement les structures avec une faible maldistribution des flux, c'est-à-dire les structures présentant un faible nombre de canaux en parallèle et un rapport de diamètre élevé. On peut ainsi déduire que ces structures se comportent comme des réseaux de canaux uniformément distribués avec un coefficient de transfert identique dans chaque chemin en parallèle dans le réseau à deux échelles. Le coefficient de transfert total est exprimé dans ce cas (à surface d'échange constante) comme suit :

$$h_t = n.h_{élémentaire} \tag{IV.14}$$

$$h_{élémentaire} = \frac{\pi \lambda Nu(L_1 + 2L_2)}{A_t} \tag{IV.15}$$

Ce coefficient élémentaire, ainsi exprimé, tient compte à la fois du coefficient de transfert dans le microcanal et de celui correspondant aux branches de distribution et de collecte et ce sans que l'effet de la maldistribution soit réellement significatif. Lorsque la maldistribution devient importante, le coefficient d'échange global dépend du débit du fluide alimentant les configurations concernées.

Pour bien comprendre cette relation linéaire entre le coefficient équivalent h_t et le coefficient partiel $h_{élémentaire}$, on va tout d'abord examiner le cas d'un réseau de canaux en parallèle, fonctionnant sans présence d'une maldistribution du fluide *(Figure IV.8)*.

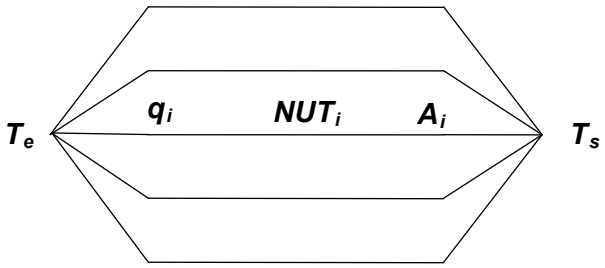


Figure IV.8. *Réseau de canaux en parallèle situé entre une température d'entrée T_e et une température de sortie T_s.*

Comme l'efficacité d'échange est dans ce cas identique pour chaque chemin situé entre la température d'entrée et la température de sortie, le nombre d'unité de transfert pour des conduites similaires est également identique pour chacun de ces chemins, on peut alors écrire que :.

$$NUT_i = NUT_t = -ln\left(1 - \frac{T_s - T_e}{T_p - T_e}\right) \tag{IV.16}$$

$$NUT_t = \frac{h_t A_t}{\rho.C_p.Q_0} = \frac{h_i A_i}{\rho.C_p.q_i} \tag{IV.17}$$

avec

$$Q_0 = \sum_{i=1}^{i=n} q_i \tag{IV.17.1}$$

et

$$A_t = \sum_{i=1}^{i=n} A_i \tag{IV.17.2}$$

En considérant des conduites identiques, la surface d'échange globale est exprimée en fonction de la surface d'échange élémentaire $A_{élémentaire}$ telle que :

$$A_t = n.A_i = n.A_{élémentaire} \tag{IV.17.3}$$

Si le fluide est équidistribué sur l'ensemble des canaux élémentaires en parallèle, il vient :

$$Q_0 = n.q_i = n.q_{élémentaire} \quad \text{(IV.17.4)}$$

où $q_{élémentaire}$ désigne le débit par canal élémentaire.

Dans ce cas, le coefficient de transfert équivalent au réseau h_t est identique au coefficient de transfert h_i relatif à chaque conduite élémentaire. Or dans le cas de notre étude, la surface d'échange globale A_t est maintenue constante ($A_t = A_{élémentaire}$) pour toutes les configurations analysées. Il en résulte ainsi que le coefficient de transfert équivalent est proportionnel au nombre de canaux mis en parallèle dans le réseau. Ceci est valable uniquement lorsque le réseau est assimilable à un réseau équidistribué ($Q = n.q_{élémentaire}$). Lorsque la maldistribution devient importante, la répartition des débits, pour une même configuration, est variable d'un chemin à un autre. Il en résulte que le coefficient de transfert équivalent n'est plus directement proportionnel à un coefficient de transfert élémentaire.

Il est ainsi constaté qu'au niveau de la deuxième partie non linéaire de la courbe, le coefficient de chaleur global varie avec le débit initial du fluide tandis que le coefficient de transfert individuel d'un canal n'en dépend pas (nombre de Nusselt constant). En effet, pour les géométries d'échangeurs considérées dans cette partie, l'apport de transfert thermique au niveau des conduites de distribution et de collecte devient important et modifie la valeur du coefficient équivalent à la structure globale selon la valeur du débit imposé. L'échangeur ne peut plus être considéré comme un réseau uniformément distribué.

Maldistribution du fluide et mélange

En examinant de près les profils de température, on peut constater que la différence entre les températures de sortie enregistrées pour les différentes structures est en partie due à la présence d'une maldistribution entre les températures dans les microcanaux. Une faible maldistribution correspond aux géométries où le fluide est très peu subdivisé (faible nombre de canaux en parallèle). La répartition des débits et des températures dans les microcanaux est relativement homogène dans ce cas. Ainsi, pour un même débit initialement introduit, les valeurs de température ne sont pas très élevées dans les microcanaux en parallèle et l'échange de chaleur réalisé dans les conduites de distribution et de collecte reste faible à cause de leurs diamètres élevés.

Lorsque le nombre de canaux mis en parallèle devient important, la maldistribution du fluide devient aussi importante. Par conséquent, les températures à la sortie des microcanaux au milieu du réseau deviennent plus importantes du fait qu'elles présentent des temps de passages relativement importants.

Dans ce cas, l'apport thermique dû, d'une part, à la subdivision du débit total sur l'ensemble des canaux et, d'autre part, aux effets de mélange réalisés dans les conduites de collecte, compense largement l'effet de la maldistribution. En effet, la subdivision du fluide en plusieurs sous fluides fait que l'échange thermique entre le fluide et la paroi durera plus longtemps dans les microcanaux en parallèle (à débits constant). Les valeurs élevées des températures résultantes compensent alors celles provenant des parties à faible efficacité.

Néanmoins, pour des configurations présentant une maldistribution très élevée, les températures provenant des canaux à faible efficacité l'emportent sur la température du mélange final à la sortie du réseau.

IV.5.2. Caractéristiques thermiques à nombre de Nusselt variable

Dans les portions des conduites de distribution et de collecte, les profils de température ne sont pas toujours complètement développés du fait des faibles longueurs de ces dernières. Ces longueurs sont généralement souvent choisies faibles dans le but d'améliorer la distribution du fluide, puisqu'elles interviennent directement dans la valeur du rapport de résistances internes *'r'*. Les effets d'entrée doivent donc être pris en compte dans ce cas. Ainsi, le nombre de Nusselt et le coefficient de transfert global ne sont plus constants, mais fonctions des nombres de Reynolds correspondants.

Dans le but d'intégrer ces effets d'entrée dans les différents canaux de l'échangeur, les corrélations exprimant les nombres de Nusselt pour un écoulement thermiquement non-développé peuvent être employées. Le nombre de Nusselt peut être exprimé en fonction de nombre de Graetz (désigné par *Gz*) comme suit :

$$Nu_{canal} = 1{,}615 Gz_{canal}^{1/3} \tag{IV.16}$$

$$Gz_{canal} = \frac{Re_{canal} . Pr . D_{canal}}{L_{canal}} \tag{IV.17}$$

Le nombre de Nusselt appliqué dans cette section, est celui défini par Schlunder et Hausen (équation (IV.18)) et est valable pour un nombre de Graetz compris entre *0,1* et 10^4. Il considère ainsi le nombre de Nusselt intégrant les effets d'entrée et le nombre de Nusselt pour un écoulement thermiquement développé ($Nu_{\infty} = 3{,}66$).

$$Nu_{canal} = (Nu_{\infty}^3 + Nu_{canal}^3)^{1/3} \tag{IV.18}$$

Par conséquent, le coefficient de transfert dans un canal varie dans ce cas en fonction du nombre de Nusselt et donc du débit correspondant circulant dans le canal. Les mêmes structures étudiées précédemment sont analysées sous les mêmes conditions géométriques et opératoires en employant un *Nu = f(Gz)*.

Les *Figures IV. 9* et *IV.10* représentent successivement les efficacités des échangeurs et les nombres d'unités de transfert globaux correspondants. L'efficacité globale représentée sur la *Figure IV.9* révèle une nette amélioration de l'efficacité d'échange. La transition du régime observée sur la *Figure IV.5* disparaît en augmentant le nombre de microcanaux en parallèle.

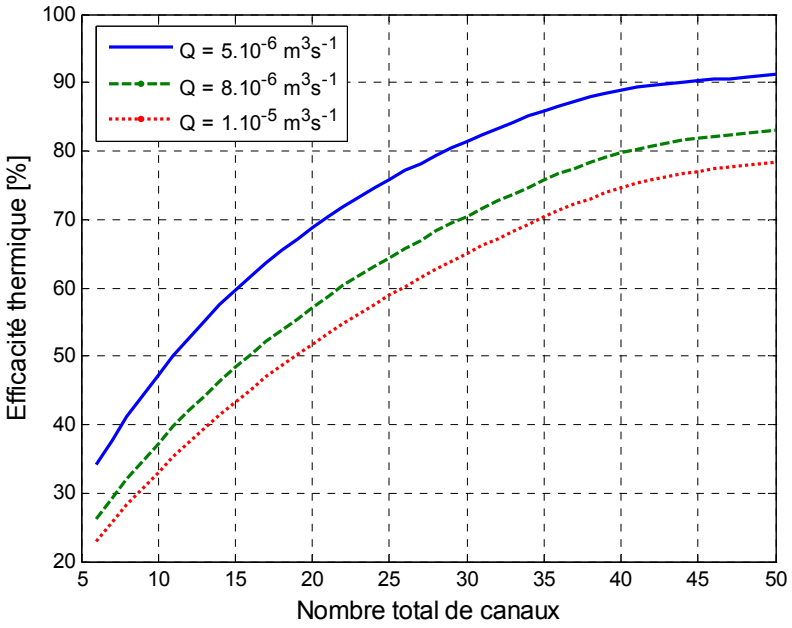


Figure IV.9. *Efficacité globale calculée pour différentes configurations à deux échelles présentant la même surface spécifique à différents débits initiaux; Nu = f(Gz).*

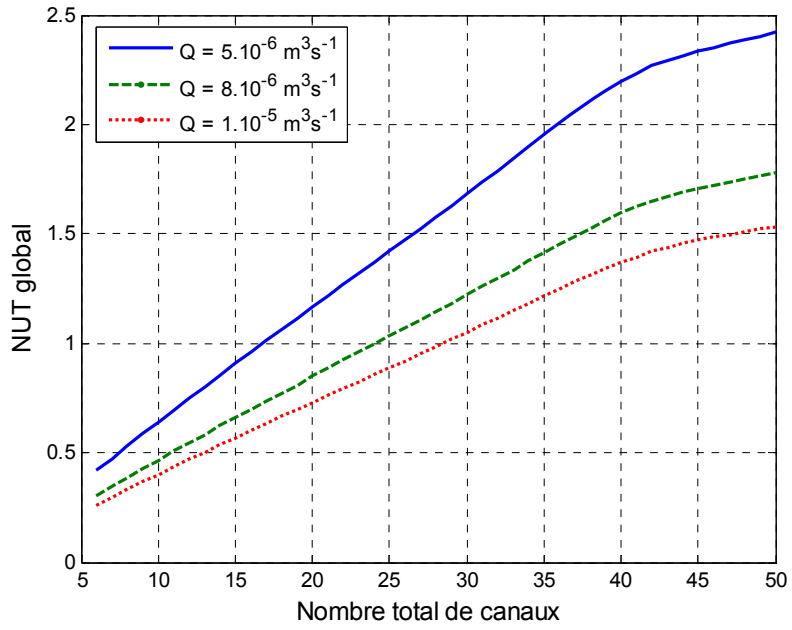


Figure IV.10. *Nombre d'unités de transfert global calculé pour différentes configurations à deux échelles présentant la même surface d'échange à différents débits initiaux ; Nu = f(Gz).*

D'autre part, comme il a été constaté précédemment (*Nu* = constante), le nombre d'unités de transfert augmente constamment avec l'augmentation du nombre de canaux en parallèle dans la première partie de la courbe *(Figure IV.10)*.

Cependant, contrairement au cas d'un nombre de Nusselt constant, le nombre d'unités de transfert continue à augmenter mais d'une façon moins importante. Les valeurs de *NUT* enregistrées sont nettement plus importantes que celles correspondant à un nombre de Nusselt constant. Il est clair qu'un tel nombre de Nusselt, décrivant le développement de l'écoulement du fluide, offre des caractéristiques thermiques plus importantes que celles calculées en régime établi. Il est à noter que pour un débit très faible, le Nusselt estimé à partir du nombre de Graetz tend vers le nombre de Nusselt estimé pour un régime établi (*Nu* = 3,66).

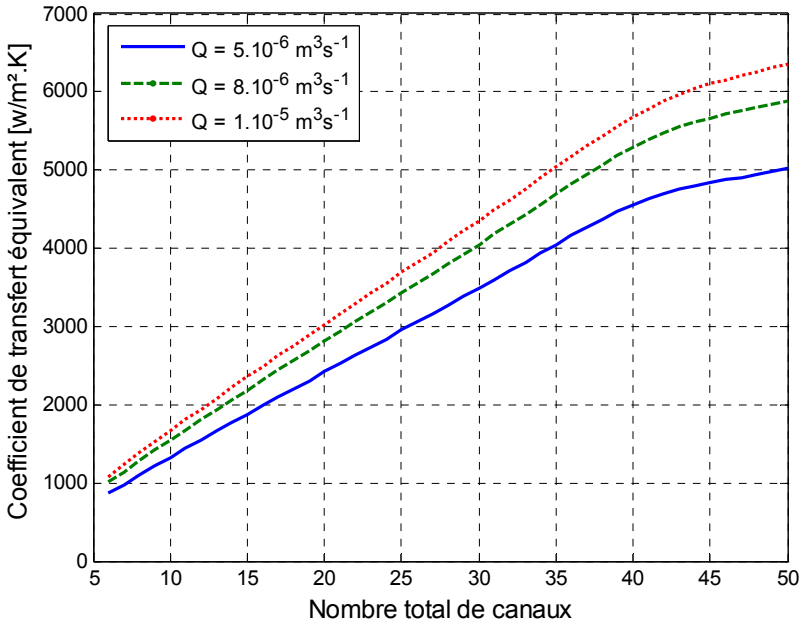


Figure IV.10. *Coefficient de transfert de chaleur équivalent pour différentes configurations à deux échelles présentant la même surface d'échange à différents débits initiaux; Nu = f(Gz).*

Les courbes représentées sur la *Figure IV.11* illustrent le fait que le coefficient de transfert global équivalent estimé pour chaque configuration, n'est pas indépendant du débit initialement introduit, comparé à celui déjà calculé à Nusselt constant. L'augmentation de ce coefficient reste cependant linéaire pour chaque débit et pour un nombre de microcanaux inférieur à 35 (*Md = 60%*). Au-delà, cette augmentation commence à ralentir comme c'était le cas des autres caractéristiques thermiques. Les ralentissements enregistrés dans les différentes caractéristiques thermiques sont dus aux mêmes raisons expliquées précédemment, à savoir la forte maldistribution et les faibles proportions des fluides chauds dans le mélange.

IV.3.4. Comparaison à maldistribution constante

Les résultats obtenus précédemment montrent plus particulièrement l'influence de la maldistribution du fluide sur la qualité de l'échange. On compare dans ce qui suit des configurations présentant à la fois, une maldistribution du fluide constante et une surface d'échange constante. Pour pouvoir satisfaire ces deux contraintes, il va falloir modifier le diamètre des microcanaux en parallèle, ce qui permet aussi d'examiner l'effet des dimensions caractéristiques de l'échangeur sur l'efficacité de l'échange.

Pour la comparaison de différents échangeurs structurés, on se propose d'étudier des échangeurs présentant une surface d'échange A_t = 0,005 m^2 et des maldistributions globales identiques avec *Md = 20%.* On fait varier le diamètre des microcanaux et des distributeurs, pour satisfaire ces dernières contraintes. On examine plus particulièrement le cas où le nombre de Nusselt est fonction du nombre de Graetz.

Tableau IV.3. *Caractéristiques thermiques à surface d'échange et maldistribution constantes ; Nu = f(Gz) et Q =10^{-5} m^3/s.*

Dimensions géométriques	***D [m]***	***NUT_t***	***h_t [W/m^{2}K]***	***η_t [%]***	***T'_n [K]***	***V_{eff} [m^3]***	***ΔP [Pa]***
r = 500, n = 23	0,0015	1,91	15851	85,22	340,10	2,96.10^{-6}	115,64
r = 1000, n = 32	0,0012	2,20	18244	88,92	342,58	2,84.10^{-6}	149,28
r = 5000, n =70	0,0008	3,08	25556	95,41	346,93	2,69.10^{-6}	285,35
r = 10000, n = 100	0,0006	3,60	29882	97,28	348,18	2,64.10^{-6}	393,25

Les différentes géométries présentées dans le tableau ci-dessus présentent une même surface d'échange et une même maldistribution des flux (même écart entre le minimum et le maximum des débits volumiques). Néanmoins, l'efficacité d'échange reste différente du fait de la variation de la dimension caractéristique des microcanaux. Sous ces contraintes, l'effet de cette dernière ainsi que celui de la structuration géométrique sur la qualité de l'échange apparaissent.

Comme on peut le constater, il est plus intéressant du point de vue de l'efficacité d'échange, de mettre en parallèle un nombre important de microcanaux de faible dimension caractéristique (ici le diamètre) que d'en mettre peu avec des dimensions plus élevées. En effet, dans ce premier cas, le débit est subdivisé d'une façon plus importante, il en résulte donc des filets de fluide avec des temps de passage plus importants ce qui favorisera l'échange avec la paroi. Dans le second cas, les temps de passage sont moins importants dans les microcanaux et l'efficacité est donc moins importante.

A contrario, du point de vue de la perte de charge, ce sont les géométries avec les plus importantes dimensions qui présentent naturellement les plus faibles pertes énergétiques.

IV.5. Analyse thermique de la structuration multi-échelle

En se basant sur les résultats analysés précédemment, les échangeurs multi-échelles sont conçus par assemblage des échangeurs élémentaires (*Figure IV.1*) en fonction des contraintes hydro-thermiques. Pour étudier l'influence de l'organisation des microcanaux dans le réseau multi-échelle sur la qualité du transfert thermique, la modélisation hydro-thermique réalisée pour une structure à deux échelles est extrapolée aux structures multi-échelles.

IV.5.1. Contraintes géométriques et conditions opératoires

Les performances thermiques sont évaluées en utilisant les distributions des débits obtenues sous les contraintes géométriques présentées dans le *Tableau IV.4*.

Dans cette section, les débits volumiques et les nombres de Reynolds correspondants sont calculés en négligeant les variations de propriétés physiques en fonction de la température tout au long de l'échangeur multi-échelle. La simulation numérique est réalisée pour 64 microcanaux identiques arrangés sur trois et quatre échelles successivement. Toutes les configurations générées à partir des 64 microcanaux sont thermiquement analysées sous les mêmes conditions opératoires que celles présentées précédemment à savoir : de l'eau à $T_0 = 283\ K$, s'écoulant avec un débit $Q = 10^{-6}\ m^3.s^{-1}$ à travers structure isotherme à $T_p = 350\ K$.

Tableau IV. 4. *Contraintes géométriques imposées pour le calcul des échangeurs multi-échelles*

Nombre d'éléments parallèles à l'échelle 'i'	***Diamètre du canal D_i[m]***	***Longueur du canal L_i[m]***
n_1	D_1	$L_1 = 20\ D_1$
n_2	$D_2 = 2\ D_1$	$L_2 = 5\ D_1$
n_3	$D_3 = 2\ D_2$	$L_3 = L_1 + D_2 + 10^{-4}$
n_4	$D_4 = 2\ D_3$	$L_4 = n_1.(L_2 + D_1) + L_2 + D_3 + 10^{-4}$

IV.5.2. Impact de l'arrangement des canaux

La structuration des flux peut engendrer des différences significatives du point de vue des performances thermiques. Les *Tableaux IV.5* et *IV.6* illustrent que la répartition des canaux sur la totalité du réseau influence inévitablement les caractéristiques hydrodynamiques de l'échangeur, ce qui génère en retour des caractéristiques thermiques différentes.

L'examen de l'ensemble des configurations confirme l'influence de plusieurs facteurs sur le comportement thermique des réseaux multi-échelles. En effet, on s'aperçoit que les configurations avec un minimum de maldistribution ne sont pas nécessairement celles qui correspondent aux plus importantes efficacités thermiques. Ceci est nécessairement du à plusieurs raisons.

Tableau IV.5. *Caractéristiques thermiques d'un réseau à trois échelles.*

$[n_1\text{-}n_2]$	Md [%]	ΔP [Pa]	η_t [%]	A_t [m^2]	NUT_t $Nu=3,66$	h_t [$W.m^{-2}.K^{-1}$]	NUT_t $Nu = f(Q= 10^{-5}m^3.s^{-1})$
[8-8]	26,27	29,30	97,93	$1,25.10^{-2}$	3,88	181,54	4,46
[16-4]	34,29	39,19	97,32	$1,02.10^{-2}$	3,62	372,49	4,33
[4-16]	47,82	35,23	98,9	$1,69.10^{-2}$	4,52	98,95	5,32
[32-2]	71,68	96,71	96,2	$9,10.10^{-3}$	3,27	741,55	4,64
[2-32]	72,33	55,87	99,72	$2,57.10^{-2}$	5,97	58,35	7,42

La première raison évidente est liée à la surface d'échange qui varie d'une configuration à une autre. En effet, la part de surface d'échange apportée par la configuration du système de distribution et de collecte ne fait qu'améliorer l'efficacité dans la mesure où la distribution du fluide n'est pas trop perturbée par une mauvaise architecture de ces systèmes.

L'autre raison importante concerne les possibilités de mélange dans les branches de collecte appartenant au réseau multi-échelle. Même si l'apport thermique dans certaines configurations maldistribuées n'est pas suffisant, les branches où le fluide est collecté assurent un apport supplémentaire d'une quantité de chaleur grâce au mélange du fluide à différentes températures.

Tableau IV.6. *Caractéristiques hydro-thermiques des configurations de 64 microcanaux en parallèle réparties sur un réseau à quatre échelles.*

$[n_1\text{-}n_2\text{-}n_3]$	Md [%]	ΔP [Pa]	η_t [%]	A_t [m^2]	NUT_t [-]	h_t [W/m^2K]	NUT_t $Nu = f(Gz)$
[2-4-8]	3,37	10,45	99,82	$3,35.10^{-2}$	6,33	24,95	6,61
[4-2-8]	4,03	11,76	99,48	$2,86.10^{-2}$	5,26	48,35	5,85
[2-2-16]	4,48	10,40	99,90	$4,12.10^{-2}$	6,92	22,40	7,31
[4-4-4]	4,94	12,67	99,22	$2,28.10^{-2}$	4,85	56,17	5,38
[2-8-4]	9,32	12,2	99,76	$2,96.10^{-2}$	6,03	27,88	6,56
[8-2-4]	9,56	16,92	98,74	$2,23.10^{-2}$	4,38	102,00	5,09
[8-4-2]	12,06	19,30	98,23	$1,74.10^{-2}$	4,04	122,35	4,73
[4-8-2]	15,98	17,39	99,05	$1,98.10^{-2}$	4,65	66,47	5,35
[16-2-2]	31,93	35,06	97,71	$1,92.10^{-2}$	3,78	203,70	4,73
[2-16-2]	32,51	21,73	99,74	$2,77.10^{-2}$	5,97	35,13	7,03

Une autre raison peut être relative à la nature de l'opération thermique effectuée à travers ce réseau. Comme il s'agit ici d'un transfert convectif entre une paroi isotherme et un fluide en écoulement laminaire, la présence d'une maldistribution implique la présence d'une partie importante de sous-débits volumiques circulant dans les microcanaux en parallèle avec un temps de passage important. Le transfert thermique a dans ce cas largement assez de temps pour

s'effectuer dans ces parties, tandis que le manque qu'on peut enregistrer dans le reste du réseau est souvent compensé par le mélange établi dans les collecteurs. Les configurations listées dans les *Tableaux IV.5* et *IV.6* peuvent être aussi représentatives de différentes architectures de réseaux. En effet, toutes les combinaisons présentant un nombre de canaux égal à deux, peuvent être adaptées à des réseaux fractals contenant une subdivision dichotomique du fluide. Par exemple la combinaison [2-2-16], qui donne une efficacité thermique importante, peut être représentative d'une géométrie arborescente schématisée sur la *Figure IV.12* ci-après.

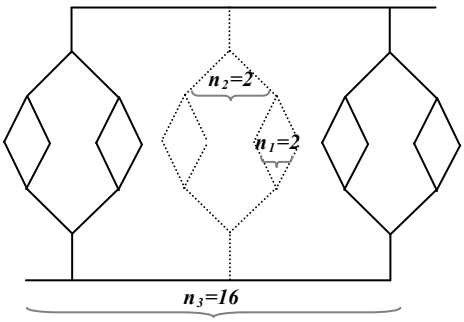


Figure IV.12. *Schéma équivalent d'une arborescence fractale [n_1-n_2-n_3] = [2-2-16].*

En absence des effets de singularités dans les différentes ramifications, la maldistribution du fluide dans les branches internes ($n_1 = 2$ et $n_2 = 2$) est nulle. Par ailleurs, la maldistribution globale enregistrée dans le réseau provient uniquement de la parallèlisation des 16 branches ($n_3 = 16$).

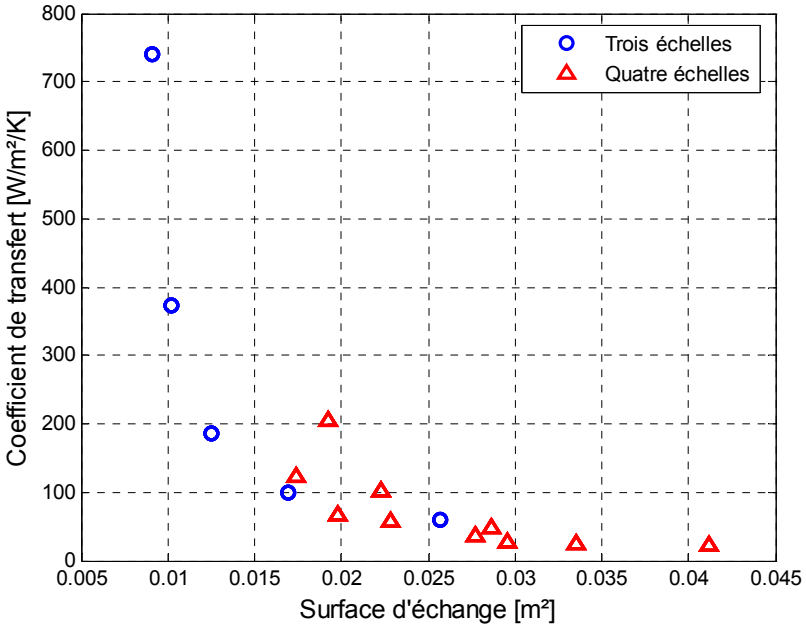


Figure IV.13*. Représentation des coefficients de transfert de chaleur équivalents aux structures à trois et à quatre échelles, en fonction des surfaces d'échanges correspondantes ; Nu = 3,66.*

Les coefficients de transferts équivalents, estimés pour les différentes structures multi-échelles groupant 64 microcanaux en parallèle, sont reportés sur la *Figure IV.13*. On peut remarquer qu'il existe une différence considérable entre les valeurs calculées pour chaque configuration. Les structures à trois échelles sont plus sensibles à une modification de la surface d'échange, comparées aux structures à quatre échelles. Ces dernières non seulement présentent les surfaces d'échange les plus élevées mais aussi la distribution du fluide la plus uniforme.

Il n'est donc pas possible de considérer un coefficient de transfert global identique pour des réseaux présentant un même nombre de microcanaux en parallèle. Une telle considération peut conduire à une caractérisation erronée de la performance de l'échangeur thermique.

IV.5.3. Impact des effets d'entrée

Les mêmes géométries à trois et à quatre échelles, sont examinées en imposant un débit dix fois plus important ($Q_0 = 10^{-5}\ m^3.s^{-1}$) et en considérant les effets d'entrées dans les différents canaux du réseau. On compare sur la *Figure IV.14,* les résultats en terme de NUT_t global estimés dans le cas d'un régime établi, avec ceux estimés en régime non-établi.

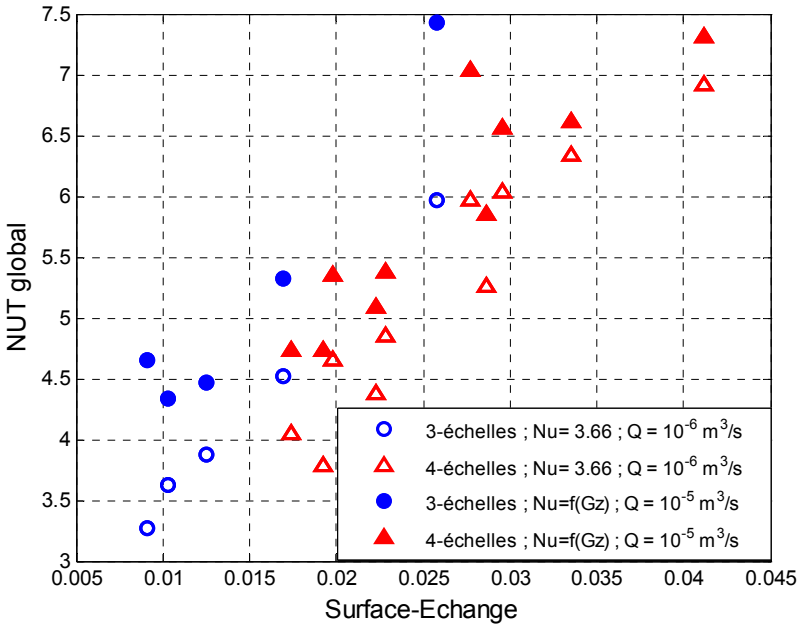


Figure IV.14. *Nombre d'Unité de Transfert global calculé pour les différentes configurations listées dans les Tableaux IV.5 et III.6.*

La première information que fournit cette figure est relative au fait qu'il existe certaines configurations présentant un NUT_t plus important que d'autres, même à surface d'échange plus faible. En effet, la variation de la surface d'échange est le résultat de la variation du mode d'arrangement des canaux dans les différentes structures et ce en respectant les contraintes géométriques imposées. Or, on a déjà vu auparavant que l'augmenation du volume du fluide n'est pas une condition suffisante pour atteindre des caractéristiques optimales. Il en est de même pour

la surface d'échange. En effet, la maldistribution résultant de l'effet de la répartition des canaux sur les différentes échelles peut masquer l'amélioration de l'échange thermique apportée par une augmentation de la surface d'échange On peut aussi voir qu'une nette amélioration du nombre d'unités de transfert est enregistrée dans le cas d'un Nusselt qui varie avec le débit volumique, bien que la valeur du débit employé soit plus faible dans ce dernier cas. Cependant, le taux d'augmentation du NUT_t global est différent d'une configuration à une autre. L'augmentation du NUT_t pour des structures à trois échelles est plus marquée comparée à celle enregistrée pour des structures à quatre échelles. Ceci est dû en grande partie au fait que, dans la plupart des structures à quatre échelles, le maximum du rendement total de l'échange thermique est globalement atteint. L'amélioration apportée par les effets d'entrées présents dans les canaux est moins remarquable dans ce cas. Cependant, même si l'établissement thermique du nombre de Nusselt est généralement non atteint dans les premières conduites du réseau, on devrait probablement l'atteindre le long de l'échangeur, notamment à très faible nombre de Reynolds et en absence des singularités. Le comportement thermique sera dans ce cas entre les deux cas extrêmes régis par les deux régimes d'établissement.

IV.5.4. Rapport des puissances hydro-thermiques

Le rapport des puissances hydro-thermiques P est défini à l'aide de l'équation (IV.19), comme étant le rapport entre la puissance thermique échangée et la puissance hydraulique dissipée. Il apporte une importante information sur l'efficacité globale de l'échangeur et peut représenter un critère important pour le choix de l'échangeur thermique.

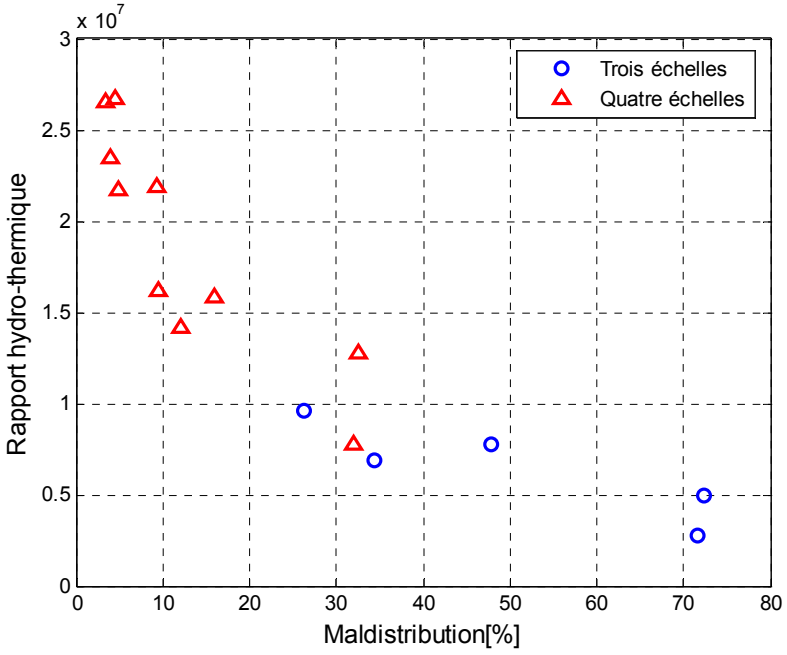


Figure IV.15. *Rapport des puissances hydro-thermiques en fonction de la maldistribution pour les différentes configurations listées dans les Tableaux IV.5 et IV.6.*

$$P = \frac{Q_m C_p (T_n' - T_0)}{Q_0 \Delta P} \tag{IV.19}$$

où Q_m désigne le débit massique du fluide à l'entrée.

On peut observer sur la *Figure IV.15* que ce rapport de puissance est élevé pour les configurations avec une faible maldistribution. En effet, la perte de charge résultante dans ce cas est généralement faible, ce qui engendre une faible puissance hydraulique dissipée. Il est aussi a noter que le principal paramètre responsable du transfert thermique est la surface d'échange. Ce qui explique le fait que les canaux répartis sur des configurations à quatre échelles, induisent les rapports de puissance les plus élevés. Ceci est dû d'une part à l'important volume global résultant (faible perte de charge) et d'autre part à l'importante surface d'échange associée à ce dernier (efficacité d'échange élevée).

IV.5.5. Impact de l'opération de transfert thermique

Il est important de savoir si les effets géométriques observés pour le cas d'un transfert de chaleur à température de paroi constante, restent du même ordre lorsque le type de transfert est différent. En effet, il est possible que certains effets majeurs dans un cas particulier du transfert thermique ne restent pas prédominants dans un autre cas, mais soient plutôt masqués ou encore compensés par d'autres effets liés à la nature du transfert.

Dans le cas d'un transfert entre deux plaques, l'évolution de la température pour le premier fluide est évidemment couplée à celle du deuxième fluide et les deux calculs doivent donc être concomitants. La valeur locale du coefficient d'échange global, lorsque les deux réseaux sont uniformément distribués, est inchangée du fait que les deux coefficients des deux plaques s'expriment uniquement à partir des propriétés thermophysiques et des caractéristiques hydrodynamiques de leur écoulement.

Cependant, si les deux fluides sont mis en jeu à contre-courant ou à co-courant dans un échangeur présentant une maldistribution interne, l'impact sur l'efficacité thermique devrait être plus important. En effet, dans ce cas de figure, les deux fluides subiront simultanément une maldistribution géométrique (en plus de la maldistribution liée au changement de propriétés physiques). Une température non-uniforme à la paroi implique que la quantité de chaleur thermodynamiquement transférable est différente d'un point à un autre dans l'échangeur, ce qui veut dire qu'on ne calcule pas l'efficacité par rapport à la même référence. L'effet du matériau appliqué ainsi que sa résistance au transfert, sont aussi des variables à inclure dans le calcul des échangeurs microstructurés.

IV.6. Conclusion

Différents paramètres affectant l'efficacité globale de différents échangeurs multi-échelles sont thermiquement analysés en régime laminaire et sous un ensemble de contraintes géométriques. Les résultats dégagés dans ce chapitre permettent de cerner les variables à contrôler pour la conception et le choix d'un échangeur thermique approprié, ainsi que leurs différents effets sur le comportement global de l'équipement microstructuré. Ils permettent aussi de renseigner comment il est possible de réduire les impacts négatifs résultants des contraintes géométriques.

Dans le cas d'un transfert convectif et en examinant les différentes configurations, il apparaît clairement que la non-uniformité des températures à l'intérieur de l'échangeur est fortement dépendante du comportement hydrodynamique du fluide, qui lui aussi dépend en grande partie des paramètres géométriques dans le réseau. Par conséquent, une efficacité importante peut être atteinte en choisissant la géométrie appropriée. Par ailleurs, quand la maldistribution des flux devient importante, le transfert de chaleur dans les conduites de distribution et de collecte devient significatif et modifie le coefficient de transfert global. Cependant, l'influence négative de la maldistribution résultant des contraintes géométriques peut être réduite par les possibilités du mélange offertes par les différentes jonctions dans les conduites de collecte de l'échangeur. Néanmoins, en régime établi, la maldistribution de fluide ne doit pas excéder 60% pour ne pas réduire les performances thermiques de l'échangeur.

La connectique entre les différents échangeurs élémentaires joue aussi un rôle déterminant dans la maîtrise du comportement hydro-thermique des réseaux multi-échelles. Le choix d'un arrangement approprié des différentes conduites dans un échangeur microstructuré, permet de minimiser l'impact de la maldistribution et de réduire la perte de charge résultante qui peut être conséquente pour certaines configurations mal conçues.

Ainsi, les performances et les limitations de ce type d'échangeur microstructuré sont évaluées dans le but d'optimiser ses propriétés thermiques. Un compromis entre l'uniformité des flux, la perte de charge et l'efficacité de l'échangeur ainsi que sa compacité doit être considéré selon les contraintes relatives aux applications envisagées.

Chapitre V

Impact de la structuration multi-échelle sur les performances d'une réaction catalytique

Dans la présente étude, les impacts de la maldistribution sur les performances des réseaux multi-échelles sont analysés à travers la mise en oeuvre de réactions catalytiques consécutives se déroulant sur les parois des microcanaux en parallèle. On va se focaliser dans ce chapitre sur les réactions catalytiques qui, à l'inverse des réactions homogènes, prétendent le plus à une intensification par miniaturisation (Commenge et al., 2002).

Le rendement de la réaction est tout d'abord évalué pour des structures à deux échelles générant différentes distributions du fluide et ce en considérant un régime chimique et un régime de transfert. Les structures multi-échelles sont ensuite analysées sous un ensemble de contraintes géométriques et opératoires. L'influence de l'arrangement des canaux sur le comportement du réseau global est examinée en considérant, comme critère d'optimisation, la minimisation de la déviation par rapport au rendement optimal global du réacteur.

V.1. Réacteurs catalytiques microstructurés

L'un des principaux points forts des réacteurs microstructurés réside dans l'amélioration des transferts de matière et d'énergie offerte par leurs petites dimensions caractéristiques et leurs surfaces spécifiques importantes (Srinivasan et al., 1997 ; Hessel et Hardt, 2004). Les réacteurs catalytiques microstructurés ont été étudiés pour différentes applications à l'échelle du laboratoire et apparaissent actuellement dans des applications à l'échelle industrielle (Hessel et al., 2008). Les conditions opératoires qu'on peut atteindre dans les microréacteurs (pression élevée, température élevé et uniforme,…), leurs fonctionnement en continu, leur transfert de chaleur pour être isotherme, leur transfert de matière pour être en régime chimique, etc., sont des caractéristiques difficilement obtenues dans les réacteurs conventionnels, ce qui les rend particulièrement intéressants pour des études de cinétique (Mies et al., 2007).

En plus, les tests de catalyseurs dans les microréacteurs nécessitent des quantités réduites de composés actifs, comparées aux réacteurs standards, ce qui fait que plusieurs formulations peuvent être rapidement testées (Senkan et Ozturk, 1999; Senkan et al., 1999). Enfin, leurs caractéristiques thermiques permettent de maîtriser des réactions fortement exothermiques et potentiellement explosives, ce qui permet de maîtriser les différents risques associés au système et d'assurer des conditions isothermes.

Les parties actives des microréacteurs catalytiques peuvent être fabriquées à partir du catalyseur lui-même ou imprégnées avec un catalyseur après leur fabrication (Mills et al., 2007). Plusieurs catalyseurs et réactions catalytiques ont été testés dans des réacteurs microstructurés et les résultats indiquent une amélioration significative de la sélectivité pour différents systèmes réactionnels (Aartun et al., 2004; Chen et al., 2007; Giornelli et al., 2007; Schwarz et al., 2008).

Kiwi-Minsker et al. (2002) ont étudié la déshydrogénation non oxydative du propane dans un réacteur microstructuré à membrane avec des microcanaux formés par l'espacement entre des filaments catalytiques. Ils ont constaté qu'une sélectivité vers le propène dépassant les 97 % peut être obtenue pour une conversion du propane supérieure à la valeur d'équilibre. L'oxydation

fortement exothermique de l'hydrogène à partir d'un mélange explosif de gaz a été réalisée d'une manière sécurisée en utilisant un réacteur microstructuré catalytique à base de Pt/Al_2O_3 couplé avec un échangeur thermique (Janicke et al., 2000). Pfeifer et al. (2004) ont examiné un catalyseur à base de *Pd/Zn,* préparé par la technologie de '*washcoating*' avec des nanoparticules, afin de l'utiliser pour le reformage du méthanol.

Cao et Gavriilidis (2005) ont étudié la déshydrogénation oxydative et catalytique du méthanol en vue de la production du formaldéhyde dans un réacteur à silicium. Des sélectivités importantes dans des conditions isothermes ont été obtenues même aux concentrations d'oxygène les plus élevées comparées à celles obtenues dans des petits réacteurs à lit fixe. Des conversions et des sélectivités élevées sont aussi atteintes dans le cas de la déshydratation du bioéthanol pour la production de l'éthylène dans des réacteurs à microcanaux imprégnés par un catalyseur à base de $TiO_2/\gamma\text{-}Al_2O_3$ (Chen et al., 2007). En plus des réactions catalytiques, de très nombreuses réactions avec différentes cinétiques ont été testées dans les microréacteurs (Renken et al., 2007).

V.2. Dimensionnement des microréacteurs

Pour maximiser les performances des microréacteurs structurés utilisés pour des mesures cinétiques à l'échelle du laboratoire, la structuration interne dans le réacteur doit être précisément contrôlée pour assurer la même distribution des réactifs à travers les structures imprégnées par le catalyseur. Le choix des dimensions caractéristiques doit être, dans un premier temps, adapté au temps caractéristique des processus limitant les réactions (Commenge et al., 2004 ; Aoki et al., 2007).

Plusieurs travaux ont été consacrés à l'examen de la maldistribution des flux dans des géométries contenant des microcanaux destinés à fonctionner comme des réacteurs catalytiques et/ou des échangeurs thermiques (Commenge et al., 2002; Amador et al., 2004; Aoki et al., 2005). Une attention particulière a été accordée aux méthodes de fabrication et d'imprégnation des couches de catalyseur dans les microréacteurs en raison de la dégradation des performances que peut engendrer un dépôt inadéquat du catalyseur dans le réacteur (Meille, 2006).

Les études réalisées sur les réacteurs monolithiques montrent que, selon le type de distributeur employé et la vitesse superficielle du gaz et/ou du liquide appliquée, différents degrés de malrépartition des fluides peuvent apparaître. Une partie importante du réacteur monolithique peut dans ce cas s'avérer inactive (Mewes et al., 1999; Gladden et al., 2003; Heibel et al., 2003). Yube et al. (2007) ont étudié l'hydroxylation du phénol pour produire du benzenediol en utilisant un microréacteur enduit par du silicate de titane (TS-1). Ils ont examiné les effets des paramètres géométriques sur le comportement du réacteur et ont trouvé que la sélectivité change considérablement en modifiant la profondeur des microcanaux, en raison de la variation du transfert de matière décrit par la modification du nombre de Sherwood.

Yang et al. (2008) ont étudié la déshydrogénation oxydative de l'éthane pour la production d'éthylène. Le design du réacteur a été réalisé en s'appuyant sur une modélisation par

mécanique des fluides numérique. Après avoir étudié la cinétique de la réaction et les mécanismes réactionnels associés dans un microcanal, une sélection d'un nombre réduit de réactions a été intégrée dans un modèle intermédiaire mettant en jeu les bilans thermiques et massiques et les caractéristiques hydrodynamiques gouvernant le réacteur. Les résultats montrent qu'une importante conversion de l'éthane est prédite par le modèle et vérifiée expérimentalement tandis que la sélectivité de l'éthylène est surestimée. Cependant, les écarts entre les prédictions et les valeurs expérimentales restent relativement faibles pour des valeurs élevées de la sélectivité. Un modèle plus global est prévu pour l'estimation des caractéristiques de plusieurs microréacteurs.

L'utilisation des microréacteurs à l'échelle industrielle implique plusieurs difficultés dès qu'ils requièrent une extrapolation du procédé par assemblage d'un nombre élevé de microréacteurs élémentaires (Markowz et al., 2005). Comme il a été discuté dans les parties précédentes de ce manuscrit, le 'numbering-up' est donc l'opération qui permet d'atteindre cette échelle industrielle tout en conservant les dimensions caractéristiques où la réaction se déroule (Matlosz et Commenge, 2002). Ainsi, tous les problèmes de maldistribution et de pertes énergétiques doivent être considérés pour dimensionner ces réacteurs multi-échelles.

V.3. Modélisation d'un réacteur catalytique multi-échelle

Les réseaux multi-échelles analysés dans les chapitres précédents (*Chapitres II* et *III*) peuvent être le siège de différentes réactions mono- ou multi-phasiques. Le fonctionnement de ces réseaux est simulé en supposant un système réactionnel hétérogène et en imposant des contraintes géométriques appropriées. On se restreint aux réactions en écoulement piston, monophasique et sans changement de phase. L'objectif principal consiste à examiner l'impact du design géométrique des différentes structures sur leurs performances globales.

V.3. 1. Modèle de réaction catalytique

Le système réactionnel simulé est représenté par deux réactions consécutives avec des cinétiques apparentes du premier ordre, se déroulant dans les microcanaux parallèles supposés enduits avec le catalyseur approprié :

$$A \xrightarrow{k_1} B \xrightarrow{k_2} C$$

A, B et *C* représentent respectivement, le réactif, le produit intermédiaire désiré et le produit non désiré ; C_{ji} représente la concentration molaire des différentes espèces ($j = A, B, C$) dans le canal numéro i. Dans chaque canal, un gaz en écoulement piston possédant les propriétés physiques de l'azote est considéré. Le gaz pénètre dans les microcanaux et réagit sur les parois catalytiques. Les conduites de distribution et de collecte ne sont pas enduites par le catalyseur. Elles ne

participent pas dans le modèle réactionnel, mais interviennent dans la modélisation hydrodynamique relative à la distribution et à la collecte des différentes espèces chimiques des réactions considérées.

La cinétique globale de la réaction est fonction des différentes cinétiques chimiques et physiques issues du parcours des particules dans un milieu catalytique. En effet, avant que la réaction chimique se produise, plusieurs étapes se déroulent comme suit : tout d'abord le gaz affronte une résistance au transfert à travers la couche limite externe du catalyseur, une fois cette couche traversée, il rencontre une deuxième résistance à la diffusion interne avant qu'il soit adsorbé sur les parois internes du catalyseur. Après adsorption du réactif, la transformation chimique a lieu et les produits résultants sont désorbés pour subir ensuite le chemin inverse parcouru par les réactifs. Le modèle réactionnel utilisé ici considère uniquement la diffusion à travers la couche limite externe du catalyseur en la représentant par le modèle du film (Villermaux, 1993). Ce dernier considère que le profil de concentration dans la couche limite est linéaire et que le transfert dans la couche limite se fait essentiellement par diffusion.

$$J = k_d \left(C_e - C_s \right) \tag{V.1.1}$$

J représente le flux de matière considéré et C_e et C_s représentent respectivement, la concentration dans la phase gazeuse et dans le catalyseur. Le coefficient de transfert k_d peut être corrélé par l'intermédiaire du nombre de Sherwood :

$$Sh = \frac{k_d . D}{D_m} \tag{V.1.2}$$

D est la dimension caractéristique, (dans ce cas le diamètre du canal) et D_m (supposé égal à 10^{-5} $m^2\ s^{-1}$) est le coefficient de diffusion moléculaire des différentes espèces dans le réacteur.

Plusieurs corrélations en micro- et en macro-canaux de différentes section, sont présentées dans la littérature (Schuster et al., 2008). Dans ce qui suit, le nombre de Sherwood est supposé constant et indépendant du nombre de Reynolds (*Sh = 4*).

L'expression du rendement du produit désiré *B* (équation (2)) considère en plus de la constante cinétique de la réaction, la constante de transfert massique des espèces dans le fluide en écoulement dans le canal.

$$\frac{C_B}{C_{A0}} = \frac{K_1}{K_2 - K_1}\left(e^{-K_1\tau} - e^{-K_2\tau}\right) \tag{V.2}$$

avec

$$K_1 = \frac{k_1 k_d}{k_1 + k_d} \tag{V.2.1}$$

$$K_2 = \frac{k_2 k_d}{k_2 + k_d} \tag{V.2.2}$$

$$K = \frac{K_2}{K_1} \tag{V.2.3}$$

où k_1 et k_2 représentent respectivement la constante de vitesse de la réaction A→B et la constante de vitesse de la deuxième réaction B→C. Le temps de séjour optimum τ^{opt} permettant d'atteindre le rendement maximal du produit désiré pour ces deux réactions consécutives est le suivant :

$$\tau^{opt} = \frac{1}{K_2 - K_1} ln\left(\frac{K_2}{K_1}\right) \tag{V.3}$$

Afin d'examiner l'effet de la structuration géométrique sur le rendement de la réaction dans le cas d'un régime chimique et dans le cas d'un régime de transfert, le rapport de constantes *K* est modifié selon la nature du régime considéré.
En effet, pour un rapport *K* donné, si un régime chimique est prédominant ($k_1 << k_d$ et $k_2 << k_d$), il vient :

- $K_1 \rightarrow k_1$, $K_2 \rightarrow k_2$ et par conséquent $K \rightarrow k_2/k_1$.

Si par contre un régime de transfert est prédominant ($k_1 >> k_d$ et $k_2 >> k_d$), il vient alors :

- $K_1 \rightarrow k_d$, $K_2 \rightarrow k_d$ et par conséquent $K \rightarrow 1$.

Ainsi, pour l'étude considérée ici, le rapport des constantes *K* est compris entre le rapport des constantes de vitesses des deux réactions consécutives et l'unité.

V.3. 2. Structure géométrique des réacteurs étudiés

Les structures multi-échelles analysées dans le cadre de cette étude présentent les contraintes géométriques résumées dans le *Tableau V.1*. La longueur des microcanaux parallèles est estimée en fonction du temps de passage optimum pour atteindre, dans le cas d'une distribution uniforme, le maximum de rendement en produit désiré à la sortie de chaque microcanal. Un débit volumique $Q_0 = 10^{-7}\ m^3/s$ est considéré à l'entrée du réseau.

Tableau V.1. *Contraintes géométriques appliquées pour modéliser la réaction catalytique dans les structures à deux, trois et quatre échelles*

Nombre d'éléments parallèles à l'échelle i	***Diamètre du canal D_i[m]***	***Longueur du canal L_i[m]***
n_1	$D_1 = 0{,}001$	$L_1 = \dfrac{4.\tau^{opt}.Q_0}{\pi.D_1^{\,2}N}$
n_2	$D_2 = 2\,D_1$	$L_2 = 0{,}05L_1$
n_3	$D_3 = 2\,D_2$	$L_3 = L_1 + D_2 + 10^{-4}$
n_4	$D_4 = 2\,D_3$	$L_4 = n_1.(L_2 + D_1) + L_2 + D_3 + 10^{-4}$

V.3.3. Critères de comparaison des réacteurs

La caractérisation hydrodynamique de ce type de structures, donne accès aux différents débits volumiques circulant dans les canaux du réacteur multi-échelle. Les calculs réalisés pour la totalité du réacteur, incluant la malrépartition du fluide, permettent de quantifier l'influence de la conception des réseaux multi-échelles et des imperfections possibles sur le rendement global du produit désiré. Les critères suivants sont calculés pour chaque configuration du réacteur :

- La déviation par rapport au rendement optimal est calculée pour chaque configuration de la manière suivante :

$$dv = 100\ \frac{C_B^{\,opt} - \hat{C}_B}{C_B^{\,opt}} \tag{V.4}$$

où $\hat{C}_B$ est la concentration moyenne exprimée comme suit:

$$\frac{\hat{C}_B}{C_{A0}} = \frac{\sum_{i=1}^{i=N} q_i \cdot \dfrac{C_{Bi}}{C_{A0}}}{\sum_{i=1}^{i=N} q_i} \tag{V.5}$$

- La perte de charge normalisée, définie comme étant la perte de charge dans le réseau global sur la perte de charge dans un canal individuel lorsque le fluide est uniformément distribué.

$$\Delta P^{*} = \frac{N.\Delta P}{R_1.Q_0} \tag{V.6}$$

- L'écart type normalisé, estimé en utilisant la même expression que celle reportée dans le *Chapitre II* du manuscrit :

$$\sigma = 100\ \frac{\sqrt{\dfrac{1}{n-1}\sum_{i=1}^{n}(q_i - \hat{q})^2}}{\hat{q}} \tag{V.7}$$

V.4. Réacteur catalytique à deux échelles

Dans cette section, le réseau à deux échelles reliant les microcanaux et représentant un microréacteur élémentaire est analysé du point de vue de sa performance hydrodynamique et du rendement de la réaction.

4.1. Distribution des temps de passage

Pour bien comprendre la raison pour laquelle des déviations par rapport au rendement maximal peuvent être enregistrées pour chaque configuration, on représente sur la *Figure V.1* les courbes de distribution des temps de passages dans les canaux parallèles où la réaction se déroule. Le calcul des débits volumiques à travers tous les microcanaux d'une structure à deux échelles permet de déduire la distribution des temps de passage dans les microcanaux.

Il convient de rappeler que pour les réseaux de canaux étudiés ici, la distribution des débits volumiques calculée en utilisant le modèle d'écoulement résistif (*Chapitre II*), est symétrique avec un minimum au centre des microcanaux en parallèle. Par conséquent, les courbes de distribution des temps de passages sont symétriques avec un maximum au centre du réseau.

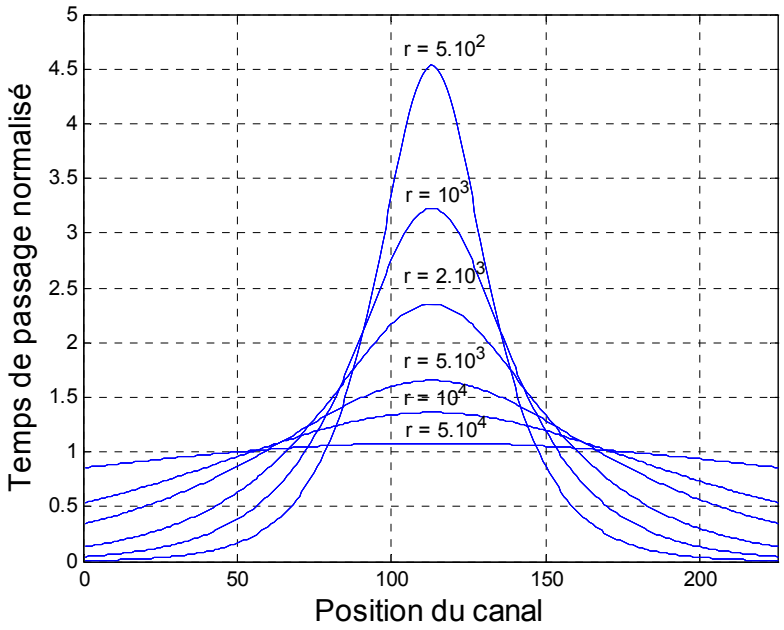


Figure V.1. *Distribution des temps de passage (normalisés par la moyenne des temps de passage) à travers un réseaux à deux échelles contenant 225 microcanaux pour différents rapports r.*

La *Figure V.1* représente ces distributions pour un réseau contenant 225 microcanaux parallèles, pour différentes valeurs du rapport de résistances internes *r*. Elle illustre comment les canaux de la structure à deux échelles peuvent fonctionner avec des temps de passage très différents lorsque les conditions géométriques sont différentes. Les microcanaux au centre du réseau présentent des temps de passage très élevés comparés à ceux aux extrémités à cause de la maldistribution des débits dans le réseau. Aux faibles rapports de résistance, la différence entre les temps de passage est considérable, ce qui peut engendrer des conséquences dramatiques sur le comportement global d'un réseau où des phénomènes physiques ou chimiques sont présents.

V.4.2. Impact de la maldistribution sur le rendement de la réaction

L'écoulement au sein de chaque canal constituant le réseau est supposé laminaire et complètement établi ce qui peut causer une dispersion des espèces à cause du profil laminaire. Walter et al. (2005) ont mentionné que le fait qu'en écoulement laminaire, les espèces au centre d'un canal ont les plus petits temps de passage et la plus grande distance à la paroi, laisse la possibilité de penser que ces espèces ne peuvent pas être complètement converties.

En considérant une réaction de premier ordre, Damköhler (1937) a classifié en fonction du rapport k_d/D les différents régimes qui peuvent se présenter dans les microcanaux. Alors qu'un régime chimique est attendu pour des valeurs de ce ratio inférieures à 0.1, un régime de transition est prévisible pour des valeurs comprises entre 0.1 et 100. Cependant, un régime de transfert est normalement prédominant pour des ratios supérieurs à 100.

Dans cette partie de l'étude, la variation du régime limitant les performances est associée à la variation de la constante *K*. Les effets de la maldistribution des flux sur le rendement du produit désiré sont estimés pour chaque constante *K*. Le réseau de canaux parallèles est dimensionné et caractérisé comme suit :

- Au départ, les canaux sont dimensionnés avec un diamètre D_1 et une longueur L_1. En effet, pour un diamètre fixe, la longueur optimale L_1 est estimée, pour chaque valeur de *K*, à partir du temps de séjour optimum (équation (V.3)) correspondant à chaque rapport *K* et ce dans le but d'atteindre un rendement optimum du produit désiré lorsque le fluide est uniformément distribué.
- En appliquant ensuite le modèle réactionnel présenté précédemment, il est possible de calculer le rendement réel dans chaque canal dans le réseau pour des distributions différentes du fluide. Ces dernières résultent d'une modification dans les dimensions des conduites de distribution et de collecte.
- La déviation par rapport au rendement optimal est calculée par la suite en déduisant la valeur moyenne du rendement global obtenue dans le réseau de la valeur obtenue dans le cas d'une distribution uniforme (équation (V.4)).

La *Figure V.2* présente l'évolution de la déviation du rendement en fonction de la maldistribution enregistrée pour chaque rapport de résistance examiné. Comme les longueurs des microcanaux dans la première échelle ont été adaptées pour donner un rendement optimum, le rapport de résistances '*r*' est modifié uniquement en variant le rapport des diamètres entre la deuxième et la première échelle.

La déviation du rendement du produit désiré augmente constamment avec l'augmentation de la maldistribution du fluide. Cependant, cette augmentation reste acceptable (dv < 5%) lorsque la maldistribution n'excède pas 60%, mais devient prohibitive lorsque la maldistribution dépasse cette valeur. La *Figure V.2* illustre également comment les déviations par rapport aux rendements optimaux d'un système de réactions consécutives du premier ordre dépendent du rapport des constantes '*K*'. En augmentant ce rapport *K*, le régime de la réaction peut passer d'un régime cinétiquement contrôlé à un régime de transfert massique. A nombre de Sherwood constant et pour des valeurs importantes des constantes de vitesse, le rapport *K* augmente et tend vers l'unité. Dans ce cas, l'influence du transfert de matière sur le rendement de la réaction est plus prononcée. Il est clair que les réactions présentant des faibles valeurs de constantes de vitesse (par conséquent, de faibles valeurs de *K*) induisent un faible rendement du produit désiré et sont généralement cinétiquement contrôlées.

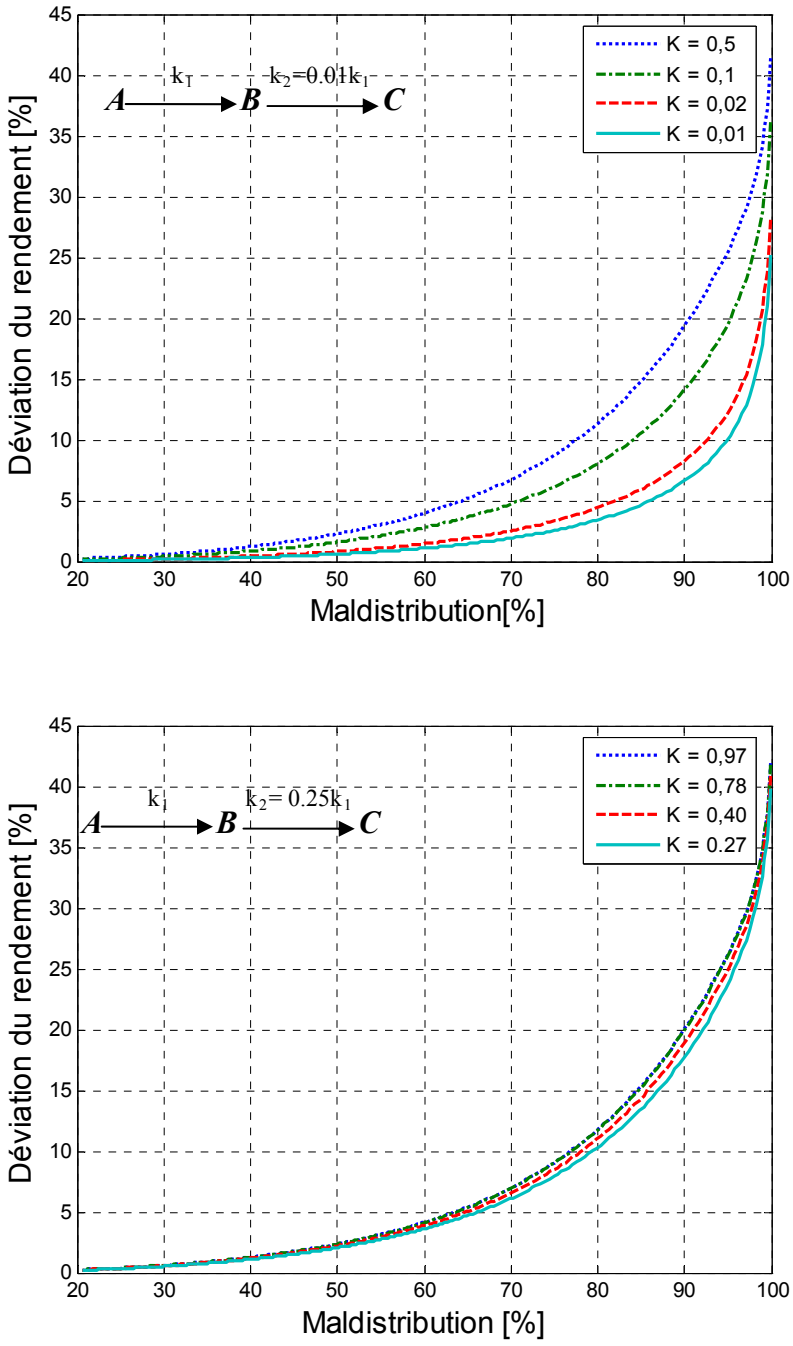


Figure V.2. *Déviation du rendement de produit désiré B en fonction de la maldistribution et pour différentes constantes K: en haut, $k_2 = 0.01k_1$; en bas, $k_2 = 0.25k_1$.*

Sur la *Figure V.3* est représentée l'évolution du rapport entre la concentration moyenne à la sortie du réseau et la concentration optimale (obtenue dans le cas d'une distribution uniforme), en fonction du temps de passage normalisé par le temps de passage optimum. δ_1 et δ_2 représentent les déviations des concentrations normalisées du produit désiré enregistrées pour une

déviation donnée du temps de passage normalisé. Ces deux déviations schématisées sur la *Figure V.3* correspondent à deux différents rapports *K (K = 0,5* et *K = 0,02,* respectivement*)*.

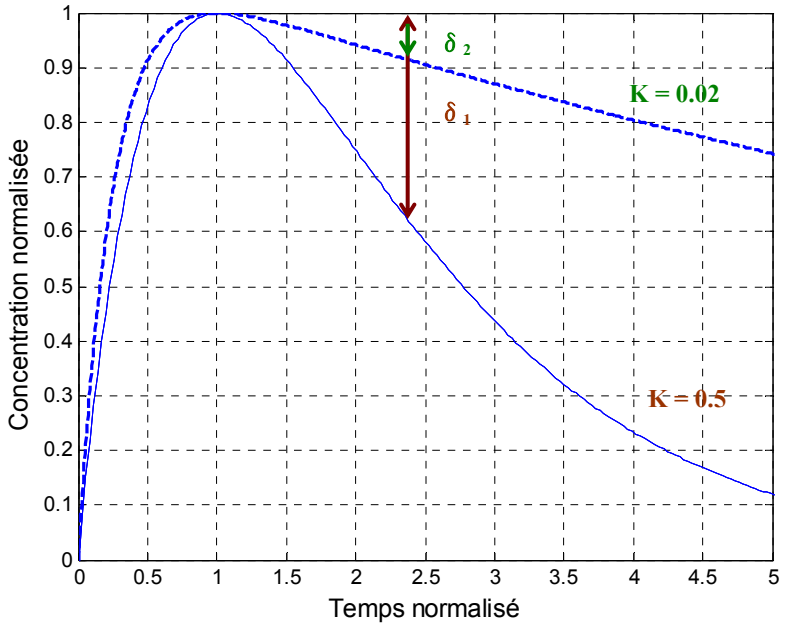


Figure V. 3. *Evolution du rapport de la concentration moyenne $\hat{C}_B$ sur la concentration optimale en fonction de temps de passage normalisé par le temps de passage optimum ($k_2 = 0.01\ k_1$).*

On peut constater, en comparant ces deux cas, que la courbe de concentration est plus plate autour du temps optimum pour une faible valeur de *K* (*K* = 0,02) et devient plus étroite lorsque *K* augmente (*K = 0,5*). Par conséquent, l'écart du temps de passage par rapport à la valeur optimale influence d'une manière plus significative la sélectivité de la réaction pour des valeurs élevées de *K* (lorsque le régime de transfert est prédominant).

Il convient de préciser d'autre part, que lorsque le rapport des constantes de vitesse des deux réactions successives tend vers l'unité, le rapport de constantes *K* tend lui aussi vers l'unité et les courbes de concentration sont dans ce cas confondues. En effet, quel que soit le régime gouvernant dans ce cas, la déviation du rendement dépend uniquement de la maldistribution due à la conception géométrique.

L'autre constatation qui apparaît à travers cette représentation des concentrations (*Figure V.3*) est relative au fait que les déviations observées pour chaque constante *K* sont très différentes lorsque les temps de passages considérés sont supérieurs au temps optimal. A contrario, ces déviations sont très voisines lorsque les temps de passages sont inférieurs au temps optimal (les courbes de concentrations sont presque superposées pour des rapports de temps inférieurs à 1).

V.5. Réseau de microréacteurs catalytiques

Pour étudier l'effet de l'arrangement des canaux sur le comportement d'un ensemble de réacteurs dans un réseau multi-échelle, le modèle de résistances hydrodynamiques présenté au Chapitre II est appliqué pour la détermination de la distribution des débits dans les canaux appartenant à chaque échelle. Ainsi, comme il a été déjà montré dans l'étude hydrodynamique de ce type de réseaux, les différentes géométries génèrent différentes maldistributions des flux.

Tableau V.2. *Impact de l'arrangement des microcanaux dans une configuration à trois échelles sur les performances globales du réseau pour K = 0,5.*

$[n_1\text{-}n_2]$	*Md [%]*	*dv [%]*	ΔP^*	*σ[%]*
[45-5]	53,2	2,1	9,4	21,4
[25-9]	55,3	2,5	9,0	23,6
[75-3]	75,8	9,0	15,0	46,7
[15-15]	76,2	9,8	11,7	48,8
[9-25]	90,7	20,9	16,9	78,8
[5-45]	97,6	30,3	27,6	112,1
[3-75]	99,4	36,8	43,4	140,4

Tableau V.3 *Impact de l'arrangement des microcanaux dans une configuration à quatre échelles sur les performances globales du réseau pour K = 0,5.*

$[n_1\text{-}n_2\text{-}n_3]$	*Md [%]*	*dv [%]*	ΔP^*	*σ[%]*
[5-3-15]	9,1	0,03	1,6	2,6
[3-5-15]	10,0	0,04	1,6	2,8
[5-5-9]	11,0	0,06	1,7	3,5
[3-3-25]	11,4	0,06	1,5	3,6
[15-3-5]	12,8	0,05	2,4	3,3
[9-5-5]	15,1	0,13	2,2	5,3
[15-5-3]	21,5	0,25	3,1	7,2
[25-3-3]	23,1	0,25	3,6	7,3
[5-9-5]	26,4	0,56	2,5	10,9
[3-15-5]	40,9	1,55	3,2	18,4
[5-15-3]	54,0	3,38	4,6	27,5
[3-25-3]	70,8	7,68	6,6	42,7

Les *Tableaux IV.2* et *IV.3* présentent les résultats obtenus en simulant le fonctionnement des différentes configurations regroupant les 225 microcanaux opérationnels répartis en trois et

quatre échelles successivement. En plus de la déviation du rendement par rapport à sa valeur optimale, la maldistribution globale (*Md)*, l'écart-type entre les débits circulant dans les microcanaux (σ) et la perte de charge normalisée correspondante ΔP^*, sont aussi reportées dans ces tableaux.

La Figure *V.4* illustre la variation des différentes caractéristiques globales en fonction de la maldistribution associée à chaque configuration reportée dans les tableaux ci-dessus.

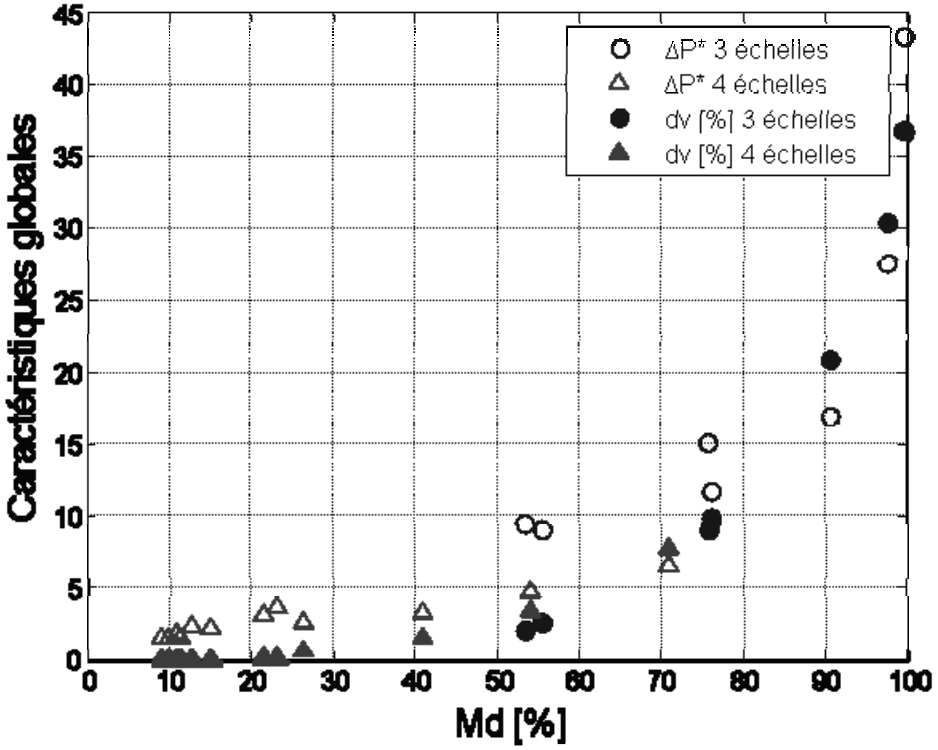


Figure V.4*. Représentation graphique des résultats reportés sur les Tableaux IV.3 et IV.4.*

Les différentes configurations contenant le même nombre de canaux enduits par le catalyseur, présentent des rendements réactionnels différents selon la maldistribution du fluide résultante. En raison des différentes organisations possibles des microcanaux dans ces réseaux multi-échelles, la maldistribution calculée pour les configurations à quatre échelles est moins élevée comparées à celle enregistrées pour des structures à trois échelles. Il en résulte que les réseaux multi-échelles optimisés, non seulement offrent une amélioration significative du rendement de la réaction, mais aussi permettent un fonctionnement à faible perte énergétique. En effet, parmi les différents réseaux étudiés, la valeur minimale de la déviation du rendement est obtenue pour la configuration [5-3-15], qui correspond à une valeur de la maldistribution de 9%.

On peut également noter que pour une maldistribution *Md* élevée, le rendement de la réaction peut être significativement diminué (*Figure V.4*). Cependant, l'augmentation de la déviation du rendement n'est pas directement reliée à l'augmentation de la maldistribution des flux. En effet, la déviation du rendement peut rester acceptable en dépit de l'augmentation de la maldistribution jusqu'à ce que cette dernière avoisine 60%. Ce résultat est observé pour les différents rapports *K* étudiés. Les observations concernant l'influence de *K* sur la déviation du rendement, constatées en examinant les structures à deux échelles, restent valables dans le cas des réseaux multi-échelles.

V.6. Robustesse des réseaux catalytiques multi-échelles

Les objets multi-échelles avec des microstructures complexes sont souvent exposés à des problèmes de bouchage, notamment lorsque des dépôts solides sont susceptibles de se former ou lorsque des post traitements comme l'imprégnation de catalyseurs sont réalisés. Le problème de bouchage peut être le résultat d'une variation de diamètre d'un canal qui peut engendrer des variations dans le régime de fonctionnement du canal.

Plusieurs études sur les micro-objets ont été consacrées à l'estimation de l'impact de la variation du diamètre caractéristique d'un canal sur le taux de conversion. Il a été montré qu'en fonction des conditions de la réaction, et spécialement de la quantité de réactif par unité de masse de catalyseur, un faible diamètre réactionnel peut modifier significativement le régime limitant la réaction. C'est la raison pour laquelle la variation du diamètre d'un canal est utilisée comme une méthode pour savoir si la réaction est limitée par le transfert externe, à condition que les résultats obtenus avec différents diamètres soient comparés dans les mêmes conditions (Walter et al., 2005; Rebrov et al., 2007).

On rappelle que dans la présente étude, le nombre de Sherwood est supposé constant et indépendant du diamètre, bien que la présence d'un bouchage soit souvent liée à une variation du diamètre caractéristique des canaux. La robustesse de ces structures multi-échelles est analysée par la simulation d'un bouchage de canaux à différentes positions dans le réseau. Sous les conditions hydrodynamiques de la présente étude (écoulement isotherme et laminaire), un problème de bouchage dans les microcanaux peut être assimilé à une augmentation de la résistance hydrodynamique R_m (résistance à l'échelle m) d'un canal donné. Ainsi, le facteur de bouchage dans les microcanaux de la première échelle est défini comme étant le rapport de la résistance hydrodynamique du canal bouché sur la résistance du canal ordinaire.

$$f_b = \frac{R_1(\text{canal bouché})}{R_1(\text{canal})} \tag{V.13}$$

Ainsi, une valeur de f_b égale à l'unité signifie qu'il n'y a pas de bouchage dans le canal considéré alors qu'une valeur importante correspond à un facteur de bouchage important.

V.6.1. Présence d'un bouchage dans une structure à deux échelles

La distribution des concentrations à la sortie des canaux en parallèle est le résultat de la distribution des débits volumiques (donc des temps de passage correspondants). En effet, comme les débits volumiques au centre et aux extrémités du réseau s'écartent du débit moyen (Chapitre II), les concentrations du produit désiré s'écartent aussi de la concentration optimale, notamment aux extrémités du réseau.

Le *Tableau V.4* illustre le cas d'une configuration élémentaire à deux échelles avec comme paramètres géométriques, un nombre de microcanaux $n_1 = 50$ et un rapport de résistance $r = 10^3$. Quatre microcanaux positionnés à différents endroits au niveau de la première échelle du réseau sont supposés complètement bouchés ($f_b >> 1$). La maldistribution est calculée entre le maximum et le minimum des débits volumiques sans tenir compte des débits circulant dans les canaux bouchés, tandis que l'écart type est calculé en considérant ces derniers.

Les résultats montrent que la forme globale de la distribution des débits reste similaire au cas sans bouchage (*Figure V.5*), ce qui fait que la répartition des rendements de la réaction sur les différents canaux parallèles reste toujours symétrique par rapport au centre du réseau. Cependant, une légère diminution de la maldistribution est enregistrée alors qu'une légère augmentation de la déviation de rendement et de la perte de charge est observée. L'écart type augmente d'une façon plus prononcée du fait que son calcul tient compte des débits nuls correspondant aux microcanaux bouchés.

Tableau V. 4. *Simulation du bouchage de 4 microcanaux sur le comportement d'un réacteur catalytique à deux échelles ; K = 0,5; $n_1 = 50$; $r = 10^3$ ($k_2 = 0{,}01\ k_1$).*

Nombre de canaux bouchés	*dv [%]*	*Md [%]*	ΔP^*	*σ[%]*
0	1,38	39,8	0,33	12,4
4	1,43	37,3	0,34	23,6

Dans le cas de la présence d'un bouchage total dans quelques canaux d'une échelle donnée, les autres canaux présents dans le réseau continuent à assurer la distribution du fluide à travers l'ensemble du réseau. Le réseau continue de fonctionner convenablement et l'excès de fluide dû à ce bouchage est constamment redistribué sur le reste des canaux (*Figure V.5*).

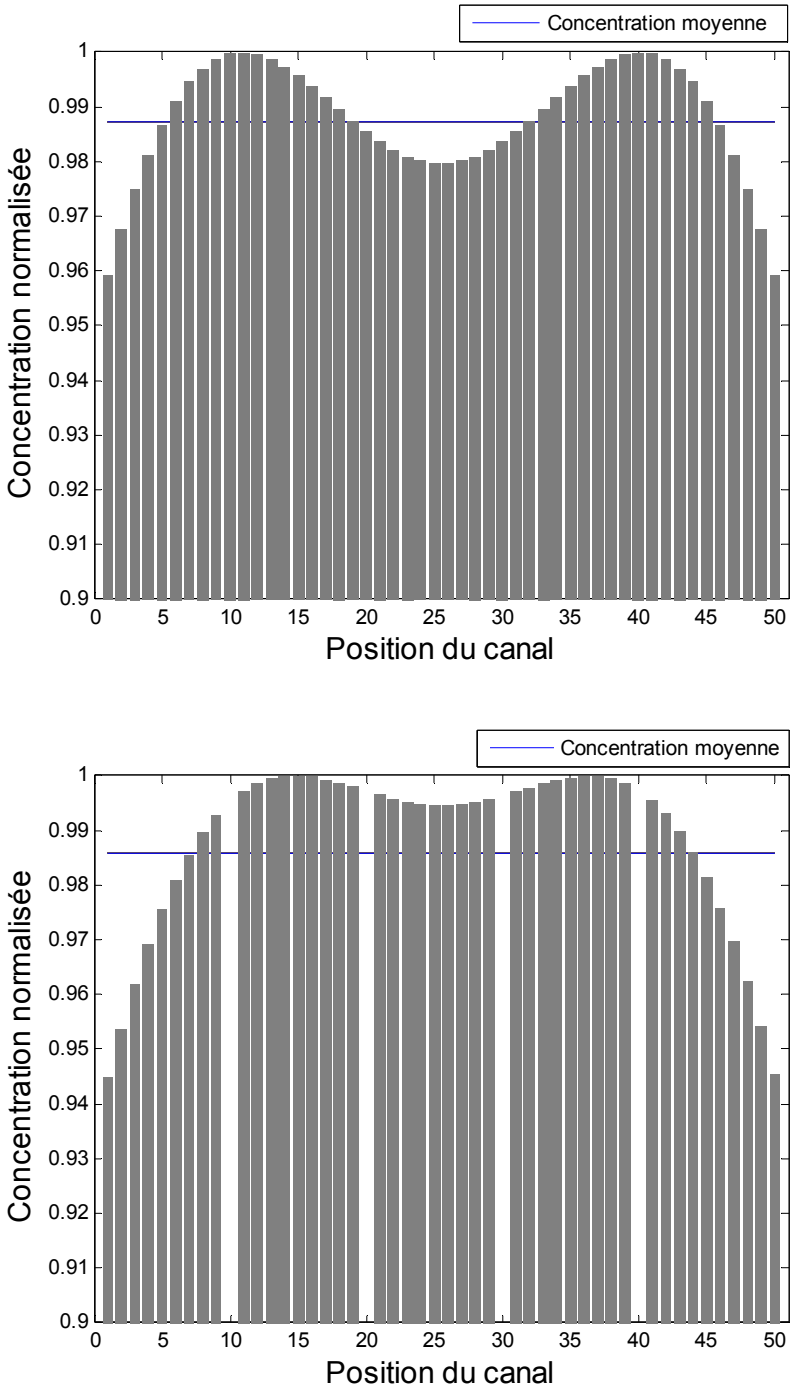


Figure V.5. *Distribution des concentrations à la sortie des microcanaux dans un réacteur à deux échelles sans (haut) et avec présence de 4 canaux bouchés (bas); la ligne continue correspond à la valeur moyenne de la concentration du produit désiré : K = 0,5, r = 10^3, (k_2 = 0,01 k_1).*

Il faut tout de même préciser qu'une diminution des performances globales du réseau est observée. Par ailleurs, la présence de bouchage dans les réseaux multi-échelles peut affecter différemment leurs caractéristiques selon le nombre de canaux bouchés, le facteur de bouchage et

la position de ce dernier. De plus amples informations sur la robustesse des configurations multi-échelles sont données dans l'*Annexe B* de ce manuscrit.

V.6.2. Présence d'un bouchage dans des structures à trois et quatre échelles

On s'intéresse ici à l'examen de la robustesse des structures à trois et quatre échelles en présence de quelques microcanaux bouchés. On suppose que parmi les 225 canaux en parallèle dans le réseau, 45 d'entre eux sont partiellement bouchés. Ces canaux bouchés sont positionnés symétriquement à travers la première échelle du réseau.

Tableau V.5. *Impact du bouchage de 45 microcanaux sur les caractéristiques des réseaux à trois et à quatre échelles.*

Configurations	***Quatre échelles [5-3-15]***			***Trois échelles [5-45]***		
f_b	***1***	***10***	***100***	***1***	***10***	***100***
dv [%]	0,03	4,2	2,4	30,3	32,9	32,3
Md [%]	9,1	7,6	7,5	96,3	96,2	96,3
ΔP^*	1,6	1,8	1,8	27,6	28,1	28,1
σ ***[%]***	2,6	44,1	49,6	112,1	121	124,2

On présente dans le *Tableau V.5* les différentes caractéristiques estimées pour deux réseaux multi-échelles différents. Ces deux réseaux correspondent respectivement à la structure optimale sur quatre échelles ([5-3-15]) présentant les performances les plus intéressantes et à la structure à trois échelles ([5-45]) présentant le même nombre de canaux à la première échelle (un seul canal parmi cinq est bouché dans chaque réseau élémentaire). La présence d'un canal bouché entraîne une modification de sa résistance hydrodynamique et une diminution du débit volumique qui le traverse. Par conséquent, les autres canaux non bouchés verront leurs débits augmenter.

Cependant, on peut voir que l'impact d'un bouchage dans un canal sur le rendement de la réaction est plus visible dans le cas d'un réseau avec une faible maldistribution que dans les autres cas. Ce comportement est expliqué par le fait que, dans le cas d'un réseau déjà optimisé géométriquement, l'apport supplémentaire d'un débit à travers un canal individuel modifie le rendement de la réaction, ce qui réduit la valeur moyenne du rendement du produit désiré.

A contrario, lorsqu'une maldistribution est déjà présente dans un réseau, l'apport d'un débit supplémentaire dû à un bouchage particulier peut assurer l'ajustement du débit individuel par canal, ce qui peut favoriser le rendement de la réaction dans les canaux en déficit (alors que ce rendement reste faible dans les canaux avec un débit en excès). Il est aussi possible de voir qu'un facteur de bouchage différent implique aussi des caractéristiques globales différentes : un bouchage partiel entraîne une déviation plus importante qu'un bouchage total. La réduction de la déviation du rendement enregistrée dans le cas d'un bouchage total est probablement due à une

augmentation des débits volumiques (ou une diminution des temps de passage) plus favorable pour l'ajustement des concentrations à la sortie des canaux. Cependant, ces résultats restent peu concluants et peuvent être différents si le nombre de canaux bouchés devient très important. En effet, dans ce cas la somme des débits récupérés des canaux bouchés devient plus importante et l'impact sur le rendement de la réaction risque d'être différent de celui présenté ici.

V.6.3. Diagnostic d'un bouchage

L'augmentation de la déviation du rendement d'une réaction au cours du temps peut donner une information correcte sur la présence d'une malrépartition interne des réactifs, mais on ne peut l'associer uniquement à la présence d'un bouchage dans les microcanaux. Ceci est notamment valable lorsqu'un nombre faible de canaux est bloqué dans un réseau où une maldistribution est déjà présente. En effet, dans ces cas de figure, la déviation du rendement causée par la conception géométrique peut être compensée par la déviation résultante d'un bouchage dans les canaux.

Par ailleurs, une augmentation de la perte de charge peut aussi renseigner sur la présence d'un bouchage dans un réseau multi-canaux. La perte de charge causée par les frottements est directement liée à la conception géométrique et aux dimensions du milieu traversé par le fluide. Par conséquent, en plus du fait qu'elle soit une mesure globale, la perte de charge devrait être très sensible à une éventuelle modification du volume fluidique causé par un bouchage.

V.4. Conclusion

En se basant sur leur analyse hydrodynamique, les performances des structures multi-échelles sont étudiées en simulant des réactions catalytiques consécutives de premier ordre se déroulant aux parois des microcanaux enduits par un catalyseur. Les résultats obtenus dans cette partie montrent comment la maldistribution à travers les microcanaux influence les performances globales du réseau. Il est montré que la conception de réseaux multi-échelles pour des applications industrielles doit considérer la présence de la non-uniformité des réactions se déroulant dans chaque réacteur appartenant au réseau global dans le but de maintenir la macro-production désirée. Cela peut être assuré en contrôlant la connectique entre les microréacteurs élémentaires afin d'atteindre les caractéristiques hydrodynamiques optimales.

Dans l'exemple de la réaction considérée, on peut constater qu'en fonction de l'étape de réaction limitante (régime chimique ou régime de transfert), la maldistribution des flux peut affecter différemment la conversion et la sélectivité des espèces présentes dans le réacteur. Il apparaît aussi qu'en régime de transfert la maldistribution affecte considérablement le rendement de la réaction par comparaison à l'influence enregistrée en régime chimique.

On a pu voir aussi que la déviation du rendement du produit désiré n'est considérable qu'à partir d'une maldistribution supérieure à environ 60%. Par conséquent, les géométries à quatre

échelles où la maldistribution des débits est la moins importante présentent les meilleures performances globales.

La robustesse de tels réseaux multi-échelles est analysée en simulant le dépôt non maîtrisé du catalyseur sur les parois des microcanaux d'un réacteur élémentaire. Les résultats montrent que même en présence de quelques canaux bouchés, le réseau continue à fonctionner correctement. Une légère dégradation des performances du réseau est enregistrée. Néanmoins, la sélectivité de la réaction est beaucoup plus sensible à un problème de bouchage que ne le sont les caractéristiques hydrodynamiques. La dégradation de la distribution des flux causée par l'opération de numbering-up ou par la présence d'un bouchage dans les conduites pourra avoir un impact plus important lorsque les phénomènes thermiques nécessaires pour la réaction sont impliqués. En effet, l'implication des effets thermiques influence non seulement la distribution des flux (comme l'a montré l'analyse thermique précédente) mais aussi les constantes de transfert massique et la réaction. Ceci peut réduire davantage les performances globales du procédé.

Chapitre VI

Hydrodynamique des réseaux de micromélangeurs en Y

Les micromélangeurs ont suscité un grand intérêt dans le développement des systèmes microstructurés en raison de leurs nombreuses applications qui concernent à la fois les systèmes physico-chimiques et les systèmes réactionnels. Cependant, lorsque ces équipements sont destinés à des applications mettant en œuvre des fluides de viscosités différentes, voire immiscibles, les réseaux de micromélangeurs sont naturellement plus complexes à développer. En effet, le fluide peut subir une évolution dynamique le long du réacteur qui peut entraîner la génération de fluide de propriétés différentes au cours de l'écoulement.

Le réseau de canaux considéré dans le cadre de ce chapitre présente une topologie différente de celles analysées précédemment. La principale différence réside dans la possibilité de considérer deux arrivées différentes de fluides, combinées dans un même microsystème (microréacteurs, micromélangeurs, microéchangeurs de matière, etc.). La modélisation avec une approche systémique, basée sur un modèle résistif, est adaptée aux écoulements diphasiques et appliquée ici à travers l'exemple d'un réseau de micromélangeurs en *Y*. On examine en premier lieu l'hydrodynamique du réseau en considérant des fluides de propriétés physiques similaires. On abordera ensuite, à travers des exemples de systèmes diphasiques (liquide/liquide et gaz /liquide), le cas où les propriétés physiques des deux fluides sont plus ou moins différentes. Les distributions et les pertes de charge correspondantes à chacun de ces fluides sont ainsi représentées en fonction des conditions opératoires et géométriques considérées.

Les informations présentées visent essentiellement à renseigner les ingénieurs dans une phase préparatoire de dimensionnement des réseaux où deux courants de fluides au minimum sont mis en jeu.

VI.1. Applications des micromélangeurs dans des procédés

Le développement des microprocédés avec des équipements miniaturisés nécessite aussi le développement de micro-unités pour le mélange des produits ou/et des effluents, généralement avec un faible temps de mélange comparé aux mélangeurs conventionnels. Les micromélangeurs qui sont le siège de réactions chimiques, doivent être adaptés aux réactions rapides compétitives et parallèles. En effet, le temps de mélange doit être inférieur au temps caractéristique de la réaction pour assurer une bonne sélectivité du produit désiré dans la réaction.

Dans les micromélangeurs destinés à la formulation du produits, la qualité du mélange dépend principalement de la formulation imposée qui doit être respectée au niveau de chaque module individuel, afin de garder la même qualité finale à la sortie de l'installation. Les réseaux de micromélangeurs doivent permettre de réaliser des mélanges répondant aux exigences industrielles, à savoir : une qualité déterminée du produit, une installation avec un maximum de sûreté, techniquement faisable et énergétiquement rentable. Il est donc indispensable de contrôler l'hydrodynamique du procédé qui est responsable à la fois des propriétés du produit ainsi que des puissances énergétiques nécessaires au fonctionnement.

VI.1.1. Mélange passif et actif

Le terme passif dans les micromélangeurs est relatif à la façon de réaliser le mélange qui est essentiellement basée sur la microstructuration géométrique et la gestion des différents flux internes. Lorsque le mélange est stimulé par une voie extérieure en apportant une énergie supplémentaire, le micromélangeur est considéré comme actif.

Micromélangeurs passifs

Les micro-mélangeurs peuvent fonctionner d'une façon passive lorsque la structuration géométrique du canal permet de créer des zones de mélange internes sans apport énergétique externe. Plusieurs géométries de micromélangeurs comme les configurations en Y ou en T, les micromélangeurs à multilamination et les micromélangeurs à advection chaotique sont présentées dans la littérature (Nguyen & Wu, 2005).

Dans les conceptions en T et en Y, une bilamination est créée et la différence de vitesse entre les deux fluides crée une stratification du mélange avec une position radiale de la ligne de mélange ajustable par les débits. Dans les micromélangeurs à multilaminations, les fluides à mélanger sont subdivisés puis recombinés dans une multitude de microstructures afin d'obtenir de très faibles temps de mélange. En effet, la zone de mélange est équipée de structurations complexes produisant des lamination multiples et permettant ainsi de créer des lamelles de fluide de faible épaisseur. Ceci permet de favoriser le transfert de matière et d'accélérer le mélange des produits (Hessel et al., 2005). Il est aussi possible de favoriser le mélange par advection chaotique en générant des trajectoires complexes pour augmenter les zones de mélange en régime laminaire. Le mélange des fluides immiscibles, comme c'est le cas des émulsions ou encore des mousses (Pennemann et al., 2004), nécessite le développement de structurations beaucoup plus complexes pour assurer un arrangement périodique des différentes phases. Pour cela, d'autres conceptions de micromélangeurs basées sur la subdivision et la recombinaison du fluide dans des microstructures avec différentes architectures plus complexes sont aussi développées.

L'objectif vise toujours l'augmentation de l'aire interfaciale et le gradient de concentration par la réduction de l'épaisseur de la lamelle. En effet, le flux diffusif *'ϕ'* est directement lié au coefficient de diffusion 'D', à l'aire interfaciale 'A' et au gradient de concentration du soluté ∇C :

$$\phi = D.A.\nabla C \qquad \text{(V1.1)}$$

L'augmentation de l'aire interfaciale est l'un des moyens les plus utilisés dans les équipements microstructurés. Hessel et al. (2005) rapportent que la longueur de mélange est proportionnelle au nombre de Péclet multiplié par la largeur du canal. Ils expliquent aussi que l'amélioration de la diffusion des espèces peut être réalisée par déformation de l'arrangement des lamelles de manière oblique, en serpentin, en spirale ou encore en d'autres formes plus complexes.

Stroock et al. (2002) ont testé plusieurs géométries de structures à bas-relief positionnées au fond du canal pour la déformation des lignes de courant dans un écoulement laminaire. Ils ont constaté que la longueur de canal nécessaire au mélange croît de manière logarithmique avec le nombre de Péclet.

Micromélangeurs actifs

Les micromélangeurs actifs nécessitent, en plus de la microstructuration interne, un apport énergétique externe qui peut provenir de différentes origines. Des perturbations pneumatiques, magnétohydrodynamiques, electro-osmotiques, ultrasoniques, acoustiques (Tseng et al., 2005, Nguyen & Wu, 2005), etc., peuvent être employées pour stimuler et favoriser le mélange.

Ces micromélangeurs sont caractérisés par un temps de mélange plus court et une efficacité plus importante comparés aux micromélangeurs passifs. Ils peuvent être utilisés pour le mélange d'une grande variété de fluides (fluides visqueux, fluides chargés de particules, ….). Ces caractéristiques sont parfois indispensables lorsque des réactions rapides, ou des milieux multi-phasiques sont mis en jeu. Les problèmes d'encrassement des micromélangeurs ont aussi incité le développement de micromélangeurs actifs intégrant différentes opérations d'entretien.

VI.1.2. Applications des micromélangeurs

Sur le plan pratique, les micromélangeurs peuvent être le siège de transformations physiques et /ou chimiques. Ils trouvent de nombreuses applications en chimie, en biologie et en procédés. Les micromélangeurs en Y et en T sont largement utilisés pour réaliser un mélange pour des réactions ou encore étudier les phénomènes de diffusion en régime laminaire. Kamholz et al. (1999) ont utilisé des mélangeurs en T comme moyen de mesure de la concentration d'une substance dans un écoulement continu en mesurant l'intensité de fluorescence dans la zone d'interdiffusion des particules.

Ying et al. (2008) ont utilisé ce type de conception pour la synthèse de nanocristaux de baryum et de boehmite. Ils ont constaté que la taille des particules dépend fortement de la concentration et de la vitesse d'écoulement des réactifs dans le micromélangeur. En effet, l'augmentation du débit d'écoulement permet de réduire considérablement la taille des particules en offrant des zones de contact qui favorisent le mélange des réactifs.

Les micromélangeurs sont aussi très adaptés pour réaliser des opérations de séparation par extraction ou par absorption en se basant sur l'amélioration du flux de diffusion.

VI.1.3. Extrapolation des micromélangeurs

La présence d'une maldistribution dans un réseau de microréacteurs mettant en jeu des courants différents de produits peut agir directement sur la sélectivité de la réaction (Kikutani et al., 2002). La non-équipartition des réactifs sur l'ensemble des canaux conduit souvent à la formation de produits non désirés dans les canaux mal alimentés. Le rendement final en produit désiré résultant à la sortie du réseau global est alors inférieur à celui espéré pour cette réaction.

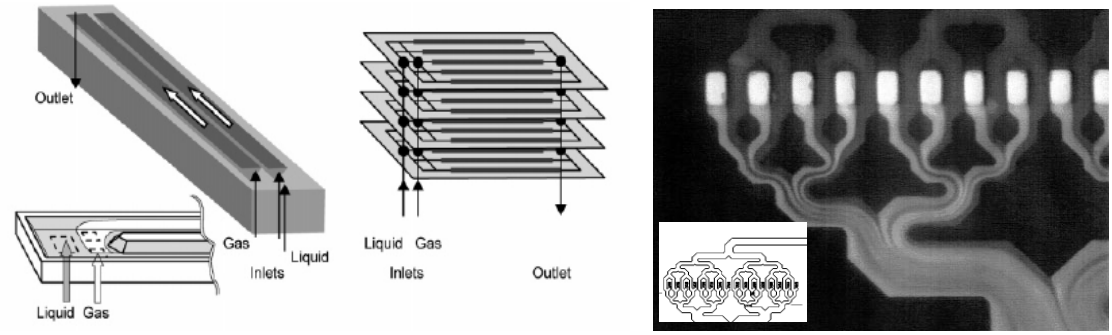


Figure VI.1. *Conception multi-échelle de microcontacteurs pour des écoulements mettant en jeu deux fluides : à droite, parallélisation d'un réacteur gaz- liquide (De Mas et al.,2005) ; à gauche, subdivision et recombinaison dichotomique des phases du mélange liquide (Bessoth et al., 1999).*

Il convient de rappeler que malgré le fait que les aspects d'extrapolations des microsystèmes et les différentes problématiques qui en résultent, sont primordiaux pour le développement industriel de ces équipements, il y a très peu d'études qui les considèrent dans la phase de dimensionnement. La suite de cette étude vise à proposer une analyse préliminaire de l'extrapolation de micromélangeurs par *numbering-up.*

VI.2. Modélisation d'un réseau de micromélangeurs

On se propose dans cette section d'analyser les caractéristiques hydrodynamiques d'un réseau de micromélangeurs en *Y* reliés entre eux par deux conduites de distribution et une conduite de collecte. L'analyse de la géométrie *Y* considérée pour le micromélangeur ne tient pas compte de l'angle formé par les deux arrivées du fluide. Par conséquent, elle peut être représentative des différentes formes possibles (différents angles formés par les deux arrivées du fluide) de cette classe de micromélangeurs et plus particulièrement la forme en *T*.

Le réseau de micromélangeurs présenté sur la *Figure VI.2* comprend deux structures à deux échelles, reliées par une conduite de collecte commune. Le premier fluide alimente la première conduite de distribution (notée Z) du réseau. Les différents débits massiques circulant dans les portions de cette conduite sont désignés par la notation z(i) (les indices i = 1,n désignent les portions de conduites numérotées par ordre croissant à partir de l'entrée). Les *x(i)* correspondent aux canaux des micromélangeurs qui se ramifient de la conduite *Z* (*fluide 1*). Ce premier fluide ainsi que les notations z et x sont associées par la suite à la phase dispersée dans le mélange.

De la même façon, dans la deuxième partie du réseau où le *fluide 2* circule, les débits sont notés *w(i)* dans la conduite de distribution (W) et *y(i)* dans la deuxième moitié des micromélageurs en *Y*. Les deux fluides provenant des deux parties formant le réseau de micromélangeurs, se rejoignent pour former un troisième fluide (fluide 3) dont les débits associés sont notés *q(i)* pour les canaux de micromélangeurs et *Q(i)* pour les portions de la conduite de collecte correspondante (*Q*).

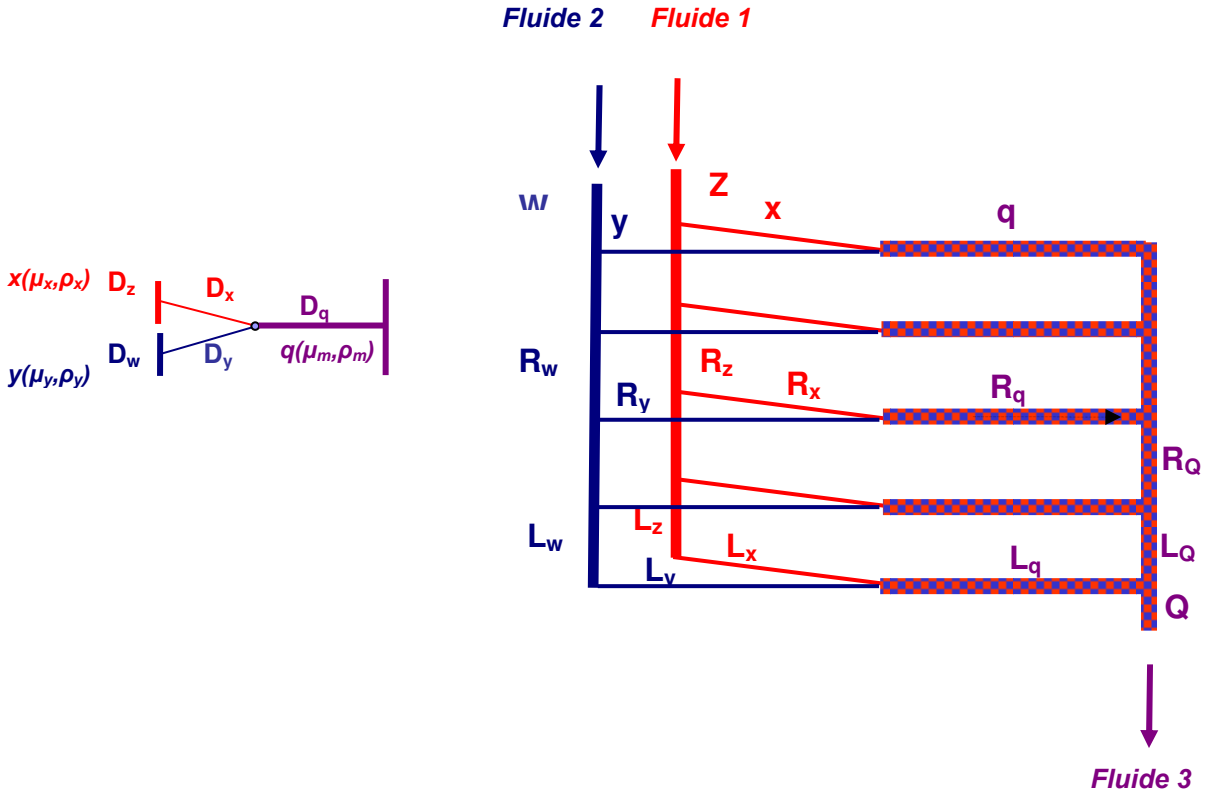


Figure VI.2. *Réseau de micromélangeurs en Y agencés en parallèle et les dimensions associées aux différents canaux.*

Selon l'application envisagée pour ce système de micromélangeurs, l'impact de la distribution du fluide pourrait avoir différentes conséquences. Si par exemple, les deux fluides introduits contiennent des réactifs, leur mélange dans le réacteur peut se réaliser avec des stoechiométries différentes. Ceci va engendrer un déficit du produit désiré dans les réacteurs maldistribués.

Pour avoir un aperçu sur le degré de maldistribution du fluide qui pourrait se produire dans ce type de système, une analyse hydrodynamique des mélanges monophasiques et diphasiques est présentée dans la suite de ce chapitre.

VI.2.1. Distribution des fluides sur un réseau de micromélangeurs

Dans l'ensemble de l'étude, on considèrera systématiquement que les différentes variables hydrodynamiques sont indépendantes de la température. S'il est nécessaire de travailler avec des conditions de température différentes pour les deux fluides on peut considérer des propriétés physiques à la température moyenne de fonctionnement.

VI.2.1.1. Bilan de matière et perte de charge

On suppose que toute l'énergie mécanique dans le réseau est dissipée par frottement entre les nœuds successifs du réseau, en négligeant les pertes de charge singulières et les pertes thermiques.

Un modèle d'écoulement résistif semblable à celui utilisé précédemment (Chapitre II) est alors appliqué sur l'ensemble du réseau et les bilans de masse et de perte de charge sont ainsi détaillés ci-après. Les forces de gravité ne sont pas prises en compte dans le calcul des différents débits, ce qui limite la validité des résultats à des réseaux de canaux de petites dimensions avec des dispositions d'orientations principalement horizontales. L'effet des différentes singularités présentes dans le réseau est aussi négligé dans la modélisation des écoulements à travers ce type de réseaux.

Equations de conservation de masse

Les lois aux noeuds découlant du principe de conservation de la masse s'écrivent dans ce cas pour $i=1,n$ comme suit :

$$z(i) = z(i+1) + x(i) \quad \text{où } z(1)= Z_1 \text{ et } z(n+1) = 0 \tag{VI.2.1}$$

$$w(i) = w(i+1) + y(i) \quad \text{où } w(1)=W_1 \text{ et } w(n+1) = 0 \tag{VI.2.2}$$

$$Q(i) = Q(i-1) + q(i) \quad \text{où } Q(n) = Z_1+W_1 \text{ , } Q(0)= 0 \tag{VI.2.3}$$

$$x(i) + y(i) = q(i) \tag{VI.2.4}$$

$$\sum_{i=1}^{i=n} x(i) = Z_1 \tag{VI.2.5}$$

$$\sum_{i=1}^{i=n} y(i) = W_1 \tag{VI.2.6}$$

$$\sum_{i=1}^{i=n} q(i) = Z_1 + W_1 \tag{VI.2.7}$$

Bilan de perte de charge

Dans ce système de micromélangeurs, il existe deux catégories différentes de mailles. La première regroupe les mailles formées par les branches où le premier fluide circule et les canaux de collecte qui se trouvent après les points de mélange. La deuxième catégorie regroupe les mailles incluant le deuxième fluide (avec des propriétés physiques différentes) et la même partie

de collecte. Cette dernière est commune aux deux catégories de mailles. Les pertes de charge considérées dans ce système sont supposées être causées uniquement par les interactions entre le fluide en écoulement et les parois des différentes parties du système.

- *Equation de maille incluant les débits x du fluide 1*

Les lois de maille proviennent du principe de l'égalité des potentiels, (donc des différences de pression), stipulant que la perte de charge à travers des chemins parallèles, partant d'un même nœud et aboutissant à un même nœud, est identique quel que soit le parcours choisi. Si on considère deux parcours successifs *i* et *i+1,* on peut écrire l'égalité de la perte de charge comme suit:

$$R_x(i)x(i)+R_q(i)q(i)+R_Q(i)Q(i)=R_z(i+1)z(i+1)+R_x(i+1)x(i+1)+R_q(i+1)q(i+1) \quad \text{(VI.3)}$$

Il s'agit de résistances hydrodynamiques massiques similaires à celles détaillée au Chapitre 2. La seule différence concerne la viscosité dynamique qui est remplacée ici par la viscosité cinématique. Ainsi, les différentes résistances hydrodynamiques massiques correspondant aux différentes conduites constituant le réseau sont exprimées, pour un écoulement laminaire en régime établi, comme suit :

$$R_j = \frac{128.\mu_j.L_j}{\pi.\rho_j.D_j^4} \quad \text{(VI.4)}$$

où l'indice *j* représente les différents fluides (*z, w, x, y, q,Q*) circulant dans le réseau. En substituant les équations aux nœuds (VI.2.1) et (VI.2.3) dans l'équation de maille (VI.3) et après un arrangement des différents termes, de façon à ne garder dans l'équation que les variables x et q (c'est-à-dire éliminer les variables z et Q), l'équation générale de mailles devient comme suit:

$$R_x(i)x(i)+R_q(i)q(i)+R_Q(i)\sum_1^i q(i)=R_z(i+1)(Z_1-\sum_1^i x(i)+R_x(i+1)x(i+1)+R_q(i+1)q(i+1)$$

Il vient :

$$\begin{aligned}&(R_x(i)+R_z(i+1))x(i)+R_z(i+1)\sum_{i=1}^{i-1}x(i)-R_x(i+1)x(i+1)+(R_q(i)+R_Q(i))q(i)+\\&R_Q(i)\sum_1^{i-1}q(i)-R_q(i+1)q(i+1)=R_z(i+1)Z_1\end{aligned} \quad \text{(VI.5)}$$

- *Equation de maille incluant les débits y du fluide 2*

De la même manière, on peut écrire les équations de perte de charge en passant par les branches y.

$$R_y(i).y(i) + R_q(i).q(i) + R_Q(i).Q(i) = R_w(i+1).w(i+1) + R_y(i+1).y(i+1) + R_q(i+1).q(i+1) \text{ (VI.6).}$$

Cette équation est l'équivalent de l'équation (VI.3). En substituant les équations aux nœuds (équations (VI.2.2) et (VI.2.4)) et en écrivant tout les termes en fonction des variables *x* et *q* on aboutit, après arrangement des différents termes, à l'équation de maille suivante:

$$(q(i)-x(i))R_y(i)+q(i)R_q(i)+R_Q(i)\sum_1^i q(i)=(W_1-\sum_1^i q(i)+\sum_1^i x(i))(R_w(i+1)+(q(i+1)-x(i+1))R_y(i+1)+$$
$$R_q(i+1)q(i+1)$$

On peut ainsi écrire:

$$-(R_w(i+1)+R_y(i))x(i)-R_w(i+1)\sum_1^{i-1}x(i)-R_y(i+1)x(i+1)+(R_y(i+1)+R_q(i)+R_Q(i)+$$
$$R_w(i+1))q(i)+(R_Q(i)+R_w(i+1))\sum_1^{i-1}q(i)-(R_q(i+1)+R_y(i+1))q(i+1)=R_W(i+1)W_1 \quad \text{(VI.7)}$$

En s'intéressant au cas particulier où toutes les branches parallèles des micromélangeurs présentent des résistances hydrodynamiques identiques $R_x(i) = R_x(i+1)$ (fluides avec des propriétés physiques identiques), les équations de maille peuvent être simplifiées de la manière suivante. Selon les chemins passant par les branches x, on peut écrire que :

$$(R_x+R_z)x(i)+R_z\sum_1^{i-1}x(i)-R_x x(i+1)+(R_q+R_Q)q(i)+R_Q\sum_1^{i-1}q(i)-R_q q(i+1)= \quad \text{(VI.8)}$$
$$Z_1 R_z$$

De la même manière en passant par y on peut écrire que :

$$-(R_w+R_y)x(i)-R_w\sum_1^{i-1}x(i)-R_y x(i+1)+(R_y+R_q+R_Q+R_w)q(i)+(R_Q+R_w)\sum_1^{i-1}q(i)- \quad \text{(VI.9)}$$
$$(R_q+R_y)q(i+1)=W_1 R_W$$

A partir du système d'équations résultant des bilans de masse et de perte de charge, il est ainsi possible d'écrire la matrice de calcul permettant d'accéder aux différents débits circulant dans le système de micromélangeurs comme suit:

$$\begin{bmatrix} a_x & b_x & 0 & 0 & 0 & a_q & b_q & 0 & 0 & 0 \\ c_x & \ddots & \ddots & 0 & 0 & c_q & \ddots & \ddots & 0 & 0 \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & 0 & \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & 0 \\ c_x & \cdots & c_x & a_x & b_x & c_q & \cdots & c_q & a_q & b_q \\ d_x & e_x & 0 & 0 & 0 & d_q & e_q & 0 & 0 & 0 \\ f_x & \ddots & \ddots & 0 & 0 & f_q & \ddots & \ddots & 0 & 0 \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & 0 & \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & 0 \\ f_x & \cdots & f_x & d_x & e_x & f_q & \cdots & \ddots & d_q & e_q \\ 1 & \cdots & \cdots & \cdots & 1 & 0 & \cdots & \cdots & \cdots & 0 \\ 0 & \cdots & \cdots & \cdots & 0 & 1 & \cdots & \cdots & \cdots & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} x(1) \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ x(n) \\ q(1) \\ \vdots \\ \vdots \\ \vdots \\ q(n) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} Z_1.R_z(i+1) \\ \vdots \\ \vdots \\ Z_1.R_z(i+1) \\ W_1.R_w(i+1) \\ \vdots \\ \vdots \\ W_1.R_w(i+1) \\ Z_1 \\ W_1 + Z_1 \end{bmatrix}$$

$$a_x = R_x(i) + R_z(i+1) \qquad a_q = R_q(i) + R_Q(i)$$
$$b_x = -R_x(i+1) \qquad b_q = -R_q(i+1)$$
$$c_x = R_z(i+1) \qquad c_q = R_Q(i)$$
$$d_x = -(R_w(i+1) + R_y(i)) \qquad d_q = R_y(i+1) + R_q(i) + R_Q(i) + R_w(i+1)$$
$$e_x = -R_y(i+1) \qquad e_q = -(R_q(i+1) + R_y(i+1))$$
$$f_x = -R_w(i+1) \qquad f_q = (R_Q(i) + R_w(i+1))$$

Ces équations s'appliquent au cas général où toutes les résistances hydrodynamiques à l'écoulement sont susceptibles de varier à cause de la variation des propriétés physiques du mélange considéré.

VI.2.1.2. Résolution numérique

La résolution de ce système d'équations est effectuée par inversion de la matrice et les débits massiques sont imposés à chaque entrée du fluide dans le réseau.

Les résistances au niveau du collecteur dans le micromélangeur en *Y* (R_q et R_Q) dépendent de la viscosité et de la densité du mélange qui elles aussi dépendent fortement du rapport de débits des deux fluides mélangés, notamment lorsqu'il s'agit d'un mélange de deux fluides avec des propriétés physiques très différentes.

Pour pouvoir tenir compte de la variation des propriétés physiques du mélange en fonction du rapport des débits, la résolution du système matriciel est effectuée d'une manière itérative. Les étapes de calcul sont les suivantes:

- Il s'agit tout d'abord de résoudre le système d'équations numériquement par inversion de la matrice en considérant une fraction volumique initiale calculée pour une distribution uniforme

des débits. On détermine ainsi la première estimation des débits dans toutes les branches appartenant au système global.

- On recalcule la nouvelle fraction de la phase dispersée qui sera cette fois-ci différente pour chaque micromélangeur à cause de la première maldistribution résultante entre les micromélangeurs en parallèle. Compte tenu des nouvelles fractions de la phase dispersée, on recalcule ensuite les nouvelles valeurs de viscosité et de densité dans chaque conduite appartenant au collecteur du mélange.
- A nouveau, on recalcule les nouveaux débits résultant et on les compare avec ceux estimés dans l'étape précédente. Avec un calcul d'erreur approprié à chaque itération, on fixera la convergence numérique comme suit.

$$\varepsilon = \left| q^{i} - q^{i-1} \right| \approx 0 \qquad \text{(VI.10)}$$

ε représente l'erreur calculée entre le vecteur débit q estimé à la $i^{ème}$ itération et le nouveau vecteur q estimé à la nouvelle itération *(i+1)*.

VI.2.2. Calcul de perte de charge globale

Les mélanges biphasiques, comme par exemple les émulsions concentrées, sont le plus souvent caractérisées par un écoulement rhéologique, le plus souvent non Newtonien, avec une viscosité qui varie avec la vitesse et le taux de cisaillement. Un des problèmes majeurs dans l'emploi des mélanges biphasiques tient à la forte puissance énergétique nécessaire pour leur écoulement. En effet, mêmes si les deux fluides employés présentent une faible viscosité, leurs mélange est susceptible de créer une importante viscosité apparente et par conséquent une importante puissance de pompage.

Ce problème devient plus important lorsque des microdimensions sont mises en jeu. Il est donc a priori nécessaire de déterminer simultanément les résistances hydrodynamiques globales générées et les dissipations énergétiques qui en sont les conséquences.

Les pertes de charge globales générées entre l'entrée et la sortie du réseau peuvent être calculées, en première approximation, en additionnant toutes les pertes de charges relatives aux conduites constituant le chemin reliant l'entrée du réseau à sa sortie. Comme tous les chemins parallèles présentent la même perte de charge globale, il suffit d'en choisir un seul à partir de chaque entrée de fluide. Les derniers chemins parallèles reliant chacune des deux entrées à la sortie unique sont choisis pour illustrer le calcul de perte de charge comme suit :

En passant par la branche x:

$$\Delta P_x = \sum_{i=1}^{i=n} R_z(i)z(i) + R_x x(n) + R_q(n)q(n) + R_Q(n)Q(n) \qquad \text{(VI.11.1)}$$

En passant par la branche y :

$$\Delta P_y = \sum_{i=1}^{i=n} R_w(i)w(i) + R_y y(n) + R_q(n)q(n) + R_Q(n)Q(n) \qquad \text{(VI.11.2)}$$

Les résistances hydrodynamiques correspondantes sont ainsi calculées :

$$R_{eqx} = \frac{\Delta P_x}{Z_1} \qquad \text{(VI.11.3)}$$

$$R_{eqy} = \frac{\Delta P_y}{W_1} \qquad \text{(VI.11.4)}$$

VI.3. Exemple d'applications des réseaux de micromélangeurs

Pour élargir le domaine d'analyse du comportement des micromélangeurs en *Y*, plusieurs scénarios sont définis et examinés. On considère dans un premier temps un mélange de deux fluides de propriétés physiques similaires. On analyse ensuite le cas d'un mélange de deux liquides de différentes propriétés physiques, puis le cas d'un mélange gaz-liquide.

VI.3.1. Contraintes géométriques

Les microcanaux (auxquels on associe les indices *x* et *y* dans la *Figure VI.2*) alimentant la partie active du micromélangeur avec le premier fluide et le deuxième fluide, ont successivement des diamètres notés D_x et D_y. Les longueurs associées sont notées L_x et L_y respectivement. Les deux fluides *x* et *y* se rejoignent au niveau d'une troisième conduite de diamètre D_q. Les deux conduites de distribution des deux fluides sont respectivement de diamètre D_z pour celle alimentant les branches *x* et D_w pour celle alimentant les branches *y*. Le mélange quittant les canaux parallèles est collecté dans une conduite de diamètre D_Q.

Tableau VI.1. *Exemple de conditions géométriques examinées*

Cas A : diamètres des canaux [µm]	$D_x = 500$	$D_x = D_y$	$D_q = 2D_x$	$D_z = 2D_x$	$D_w = 2D_x$	$D_Q = 2D_x$
Cas B : diamètres des canaux [µm]	$D_x = 500$	$D_x = D_y$	$D_q = D_x$	$D_z = 5D_x$	$D_w = 5D_x$	$D_Q = 5D_x$
Longueurs des canaux [µm]	$L_x = 30 D_x$	$L_y = 30D_x$	$L_q = 50D_x$	$L_z = 5D_x$	$L_w = 5D_x$	$L_Q = 5D_x$

On rappelle que les dimensions géométriques sont données à titre indicatif pour une estimation éventuelle du volume de fluide et de la perte de charge à travers le réseau global. L'influence de toute dimension géométrique et/ou de propriété physique peut être représentée par une variation d'une résistance hydrodynamique qui intervient directement dans le calcul des sous-débits des fluides.

Le mélange résultant est caractérisé dans ce cas par des corrélations linéaires décrivant ses propriétés physiques comme suit :

$$\mu_m = \mu_x \alpha_x + \mu_y (1 - \alpha_x) \tag{VI.12}$$

$$\rho_m = \rho_x \alpha_x + \rho_y (1 - \alpha_x) \tag{VI.13}$$

où ρ_x (*fluide 1*) et ρ_y (*fluide 2*) représentent respectivement, les masses volumiques de la phase dispersée et de la phase continue alors que μ_x et μ_y sont les viscosités dynamiques correspondantes.

La fraction volumique de la phase dispersée correspondant au *fluide 1* dans le *fluide 3* est définie à partir des débits massiques initialement introduits comme suit:

$$\alpha_x = \frac{Z_1 / \rho_x}{Z_1 / \rho_x + W_1 / \rho_y} \tag{VI.14}$$

Il convient de signaler que les propriétés physiques du mélange ne sont pas souvent représentées par des relations linéaires, notamment lorsqu'il s'agit de mélanger des fluides avec des viscosités très différentes. Néanmoins, on se restreint à l'utilisation de ces dernières pour limiter la complexité des calculs et essayer d'adapter les résultats à différents cas d'étude.

VI.3.2. Mélange de fluides de propriétés physiques voisines

On se propose dans cette partie d'analyser le comportement hydrodynamique de l'écoulement en considérant des fluides newtoniens avec des viscosités et des densités voisines qu'on supposera identiques dans l'exemple étudié.

VI.3.2.1. Systèmes de distribution et de collecte

Dans certains cas de microprocédés, les dimensions géométriques du système fonctionnel sont imposées pour satisfaire par exemple des contraintes liées aux techniques de fabrication ou à l'emplacement de l'équipement dans une installation. C'est le cas par exemple d'un réseau de micromélangeurs composés d'un système de distribution similaire à un système de collecte. Pour cette configuration géométrique, la présence d'une distribution non uniforme est prévisible. En effet, comme la conduite de collecte combine les deux fluides (donc présente un débit plus élevé), il est évident que la perte de charge résultante est supérieure dans cette partie. Il convient alors de

dimensionner dès le départ une conduite de collecte avec une résistance hydrodynamique R_Q inférieure à celles des conduites de distribution R_z et R_w.

Il est à noter que sous un régime laminaire et isotherme, la distribution du fluide à travers les différentes branches des micromélangeurs est indépendante de la somme des débits initiaux. Dans ce cas particulier (même fluide introduit dans le réseau avec des débits volumiques identiques), les paramètres influençant cette distribution sont les mêmes que ceux déterminés dans la première analyse hydrodynamique (*Chapitre II*) effectuée sur des réseaux à deux échelles.

En effet, le réseau de micromélangeurs devient équivalent à deux structures à deux échelles avec une partie commune qui correspond à la conduite de collecte. La seule différence entre les deux problèmes tient au fait que le système de collecte commun aux deux structures, combine les deux fluides et donc voit le débit total qui le traverse augmenter. Par conséquent, la perte de charge est plus importante dans cette partie. La distribution du fluide sur les micromélangeurs n'est plus symétrique dans ce cas et il faut augmenter la dimension de la conduite de collecte par rapport à celle des conduites de distribution.

Néanmoins, pour retrouver la même forme de distribution de fluide que celles obtenues précédemment (distributions symétriques illustrées dans le Chapitre II), il faut dimensionner les conduites de manière à avoir un même débit initial pour chaque entrée de fluide et une résistance $R_Q = R_z/2$. La *Figure VI.3* regroupe les distributions de fluide dans le cas où le même fluide est introduit à travers les deux entrées du réseau avec un même débit initial et pour différentes résistances hydrodynamiques de la conduite de collecte.

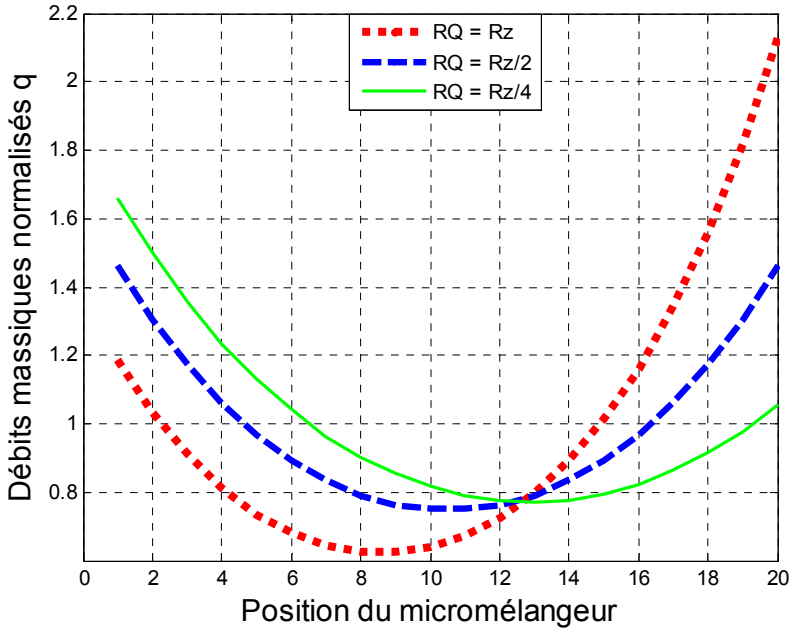


Figure.IV.3. *Distribution des débits massiques normalisés par le débit moyen dans un réseau de 20 micromélangeurs en parallèle pour différentes résistances R_Q.*

La première étude réalisée sur les structures multi-échelles où un écoulement monophasique a été considéré, a permis de nous renseigner sur l'impact de l'ensemble des paramètres géométriques sur les caractéristiques hydrodynamiques d'un réseau formant une configuration en Z (ou en S). Ces paramètres géométriques incluent les dimensions des canaux (qui interviennent généralement dans des rapports de résistances hydrodynamiques internes) et le nombre de canaux. L'influence de ces paramètres n'est pas détaillée dans cette section.

L'analyse se focalise sur les nouveaux paramètres relatifs aux écoulements biphasiques à savoir : le rapport des phases et la nature des phases mélangées. Ainsi, pour le reste de l'étude, la résistance hydrodynamique dans les canaux où le fluide Q circule, est exprimée comme suit:

$$R_Q = \frac{128.\mu_Q.L_Q}{2.\pi.D_Q^4} \tag{VI.15}$$

Ainsi, en réduisant la résistance hydrodynamique au niveau du collecteur par un facteur 2 on pourra atteindre la même résistance que celle présente au niveau des deux conduites principales de distribution. Ceci permettra de conserver la symétrie du circuit résistif lorsqu'un mélange de fluides de propriétés physiques identiques est mis en jeu.

VI.3.2.2. Variation de la fraction volumique

Bien que la distribution du fluide sur les différentes branches du réseau soit indépendante de la valeur du débit total introduit (c'est-à-dire la somme des débits aux entrées du réseau), elle dépend fortement du rapport entre les deux débits. Les figures suivantes illustrent comment agit la fraction volumique α_x sur la distribution interne relative à chacun des deux fluides. Pour chaque distribution de débits associée à une série de branches donnée (x, y ou q), les débits massiques circulant dans les branches parallèles sont normalisés par le débit correspondant à la moyenne de ces derniers. On peut clairement remarquer sur la *Figure IV.4* que c'est le fluide correspondant à la plus faible fraction volumique initiale qui subit la plus grande maldistribution interne. En effet, dans ce cas, le passage du fluide avec le plus grand débit est favorisé.

Les cas A et B correspondent respectivement à deux différents rapports de diamètres, ce qui génère deux différents rapports de résistances internes et par conséquent des distributions du fluide très différentes selon le nombre de canaux mis en parallèle. Dans le *Tableau VI.1,* les contraintes géométriques du cas A correspondent aux rapports de résistances internes : $R_x/R_z = R_y/R_w = 96$ et $R_q/R_z = 6$ et celles du cas B aux rapports $R_x/R_z = R_y/R_w = R_q/R_z = 3{,}75.10^3$. Il est donc prévisible que la maldistribution enregistrée dans le cas A soit plus prononcée que celle enregistrée dans le cas B.

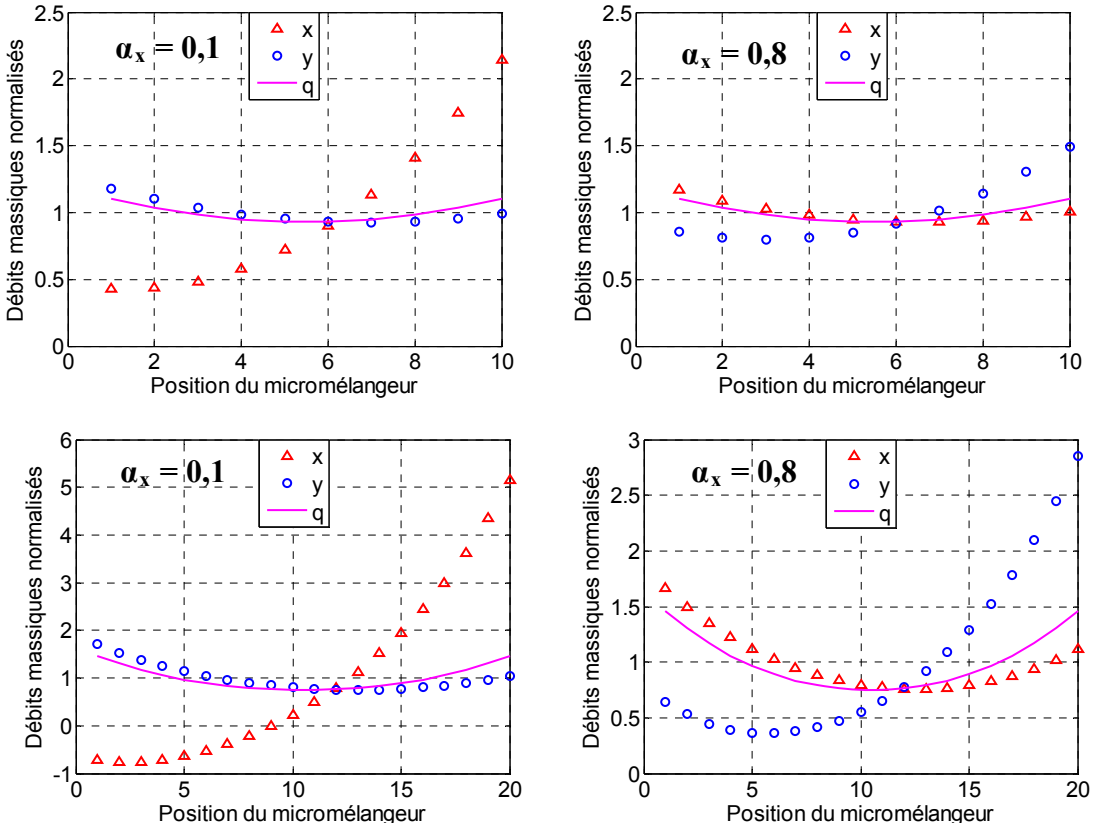


Figure VI.4.A. *Distribution des débits normalisés pour deux fractions volumiques différentes (α_x = 0,1 à gauche et α_x = 0,8 à droite) et deux valeurs du nombre total de canaux en parallèle (n = 10 en haut et n = 20 en bas) : Cas A dans le Tableau VI.1.*

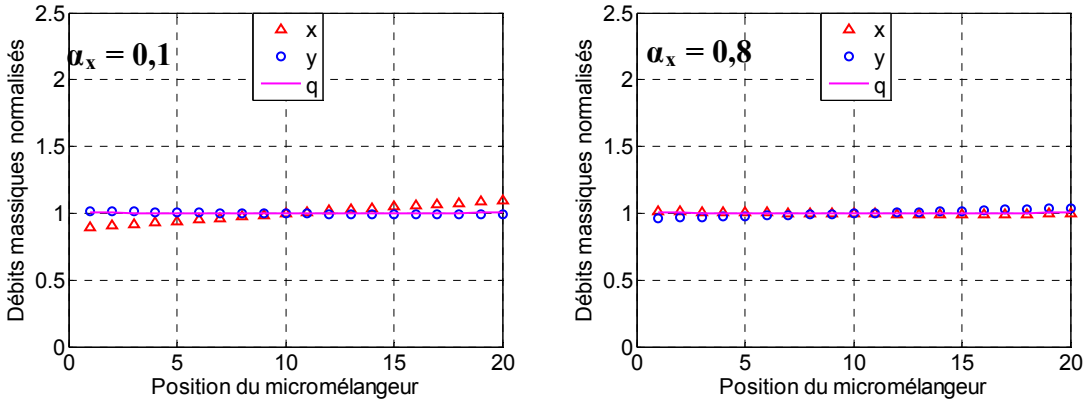


Figure VI.4.B. *Distribution des débits normalisés obtenue pour les deux fractions volumiques (α_x = 0,1 à gauche et α_x = 0,8 à droite) et pour n = 20 : Cas B dans le Tableau VI.1.*

La *Figure VI.4.A* illustre la distribution du fluide obtenue lorsque les rapports de résistances internes sont faibles. La *Figure VI.4.B* illustre le cas où les rapports de résistances sont relativement plus importants. On peut remarquer que pour des fractions volumiques similaires et pour un même nombre de micromélangeurs en parallèle, la distribution du fluide (q) circulant dans la partie commune du réseau est plus uniforme dans le cas où les rapports de résistances internes sont importants (Cas B). On peut ainsi retrouver les résultats de l'analyse hydrodynamique effectuée sur les structures à deux échelles (*Chapitre II*).

En examinant plus particulièrement les distributions des fluides reportées sur la *Figure VI.4.A* pour différents nombres de micromélangeurs, on peut voir que pour une même fraction volumique, le fait d'augmenter le nombre de micromélangeurs en parallèle augmente la maldistribution du fluide et peut rendre le réseau hydrodynamiquement instable (comme le montre l'exemple du $\alpha_x = 0{,}1$ et $n = 20$). Par ailleurs les rapports de débits (x/q) correspondant à chaque micromélangeur, s'écartent de celui imposé initialement ce qui risque d'induire des propriétés différentes du produit issu du mélange.

La présence de boucles de recirculation dans le réseau de micromélangeurs est constatée lorsque l'écart entre les débits initiaux devient trop important (c'est-à-dire pour α_x très différent de 0.5). Lorsqu'un faible débit de fluide est introduit dans une branche alors que l'autre partie du réseau est alimentée avec un débit relativement plus important, un déséquilibre est créé dans le réseau à cause des différentes pertes de charge résultantes pour les deux fluides respectivement. Le fluide qui circule avec une perte de charge plus importante sera celui qui va passer dans les micromélangeurs. Le deuxième fluide passera préférentiellement dans certains canaux du réseau pendant que des retours de fluide sont enregistrés dans le reste des canaux. Il apparaît donc nécessaire de contrôler les pertes de charge globales de part et d'autre du réseau.

VI.3.2.3. Analyse de la perte de charge globale

Sur la figure ci-après sont portées les résistances hydrodynamiques globales en fonction de la fraction volumique (α_x) du *fluide 1* dans le mélange et ce pour un réseau de 20 micromélangeurs en parallèle (avec les dimensions géométriques correspondantes au cas B dans le *Tableau IV.1*). Le fluide avec la plus petite fraction volumique possède la plus importante résistance hydrodynamique. Au fur et à mesure que cette fraction augmente, la résistance globale correspondante décroît. Inversement, dans la deuxième partie du réseau où le deuxième fluide circule (fluide considéré comme la phase continue), la résistance globale croit avec l'augmentation de la fraction volumique de la phase dispersée.

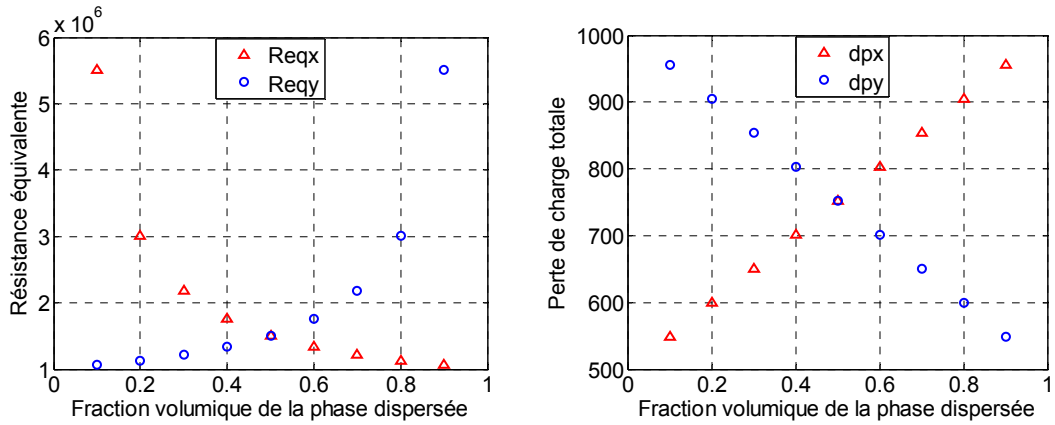


Figure VI. 5. *Evolution de la résistance hydrodynamique globale et de la perte de charge globale en fonction de la fraction volumique initiale α_x.*

Dans ce cas particulier où les deux fluides possèdent les mêmes propriétés physiques, il suffit d'examiner le comportement du réseau pour des valeurs de α_x comprises entre 0 et 0,5. La résistance hydrodynamique équivalente diminue très vite lorsque la fraction α_x passe de 0,1 à 0,5. Cependant les valeurs de R_{eqy} restent supérieures à celles de R_{eqx} jusqu'à atteindre une fraction volumique de 0,5. Au delà de cette dernière valeur de α_x c'est le comportement des deux résistances qui s'inverse (comme le montre la *Figure VI.5*).

Ainsi, en examinant la perte de charge à travers l'une des deux phases, on peut voir que la variation du rapport de débits initialement introduit (fraction volumique d'une des deux phases dans le mélange) influence d'une manière très remarquable la valeur de la perte de charge globale. Pour équilibrer la perte de charge des deux parties du réseau, (c'est-à-dire la perte de charge à travers les deux différentes entrées du réseau) on peut modifier les dimensions géométriques des branches qui interviennent dans la valeur de la perte de charge.

Par exemple, il est possible de concevoir des canaux avec des dimensions plus faibles pour la partie du réseau qui génère une perte de charge plus faible (dans ce cas la partie où un faible débit volumique circule). Si des contraintes sur les dimensions des canaux du micromélangeur sont imposées, il convient de modifier les conduites de distribution plutôt que les conduites de collecte qui sont communes aux deux parties du réseau.

VI.3.3. Mélange liquide-liquide

Les mélanges liquide/liquide trouvent de très nombreuses applications, notamment dans les produits pharmaceutiques, les produits cosmétiques, les produits d'entretien et les produits alimentaires. La formation des émulsions, par exemple, est un des cas les plus sensibles lors de sa fabrication. La taille des gouttelettes de la phase dispersée dans une émulsion, sa rhéologie, sa stabilité dans le temps et dans des conditions opératoires critiques sont des points importants à respecter pour un cahier des charges donné.

Il est primordial de respecter dans ce cas le rapport exigé entre les deux phases constituant le mélange final. Ce dernier affectera principalement les critères de stabilité suivants:
- La taille des gouttelettes : en effet, l'une des deux phases (ou les deux à la fois) constituant le mélange transportera le tensioactif nécessaire à la formation des émulsions. Une maldistribution entre les différentes branches du système engendrera des concentrations différentes dans chaque micromélangeur et donc une distribution de tailles différente.
- La rhéologie de l'émulsion, qui est elle aussi une fonction du rapport des débits, représente l'un des principaux paramètres influençant les pertes énergétiques dans le procédé. La stabilité, dans le temps et dans des conditions de température et de pressions données, est aussi directement affectée par ce rapport de débits. Une émulsion avec un rapport élevé (émulsion concentrée) est généralement moins stable dans le temps qu'une émulsion à faible rapport (émulsion diluée).

VI.3.3.1. Distribution du fluide

Afin de bien cerner l'effet des propriétés physiques des fluides mélangés sur la répartition interne des débits dans l'ensemble du réseau, les contraintes géométriques sont maintenues constantes et correspondent au cas B dans le *Tableau VI.1*. Le système (x / y) correspond ici au système (huile de silicone/eau) avec les propriétés physiques suivantes pour l'huile (à $T = 293K$): $\rho_x = 960\ kg/m^3$ et $\mu_x = 8.710^{-3}\ Pa.s$. Il convient de préciser ici que la désignation de la phase dispersée est donnée à titre indicatif et qu'en écoulement laminé de deux liquides, il est aussi concevable que les deux phases soient continues.

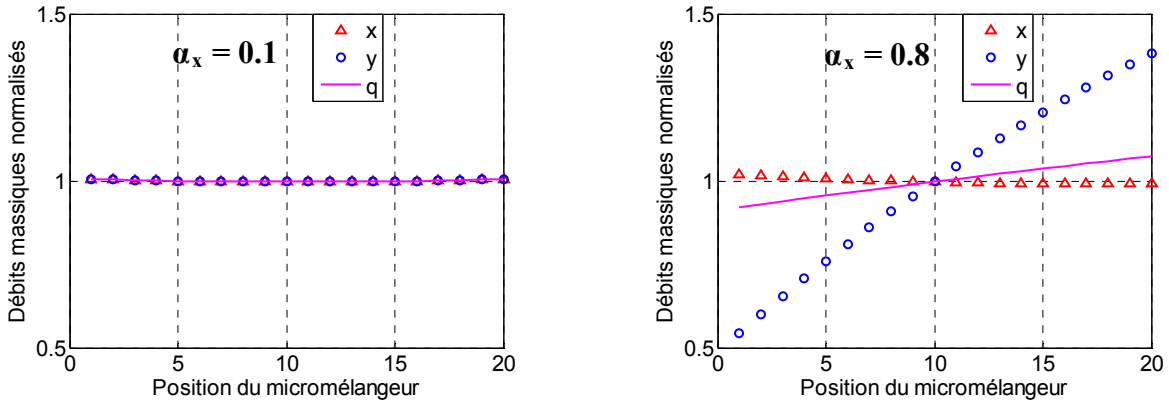


Figure VI.6. *Distribution des débits massiques normalisés dans le cas de deux fractions volumiques : $\alpha_x = 0.1$ (à gauche) et $\alpha_x = 0.8$ (à droite).*

La *Figure VI.6* illustre la distribution des différents fluides circulant dans le même réseau pour deux fractions volumiques différentes. On peut remarquer que la distribution est uniforme pour un $\alpha_x = 0{,}1$ alors qu'elle devient non-uniforme pour $\alpha_x = 0{,}8$ notamment pour les débits circulant dans les branches y(i). En effet, en raison des viscosités différentes des deux fluides, la différence entre les pertes de charge correspondantes aux deux parties du réseau est la plus faible

pour le premier cas et devient plus importante pour le second cas. Un calcul de la perte de charge pour différentes fractions volumiques du *fluide 1* (l'huile de silicone) dans le mélange permet de mieux éclaircir ce point.

VI.3.3.2. Résistance à l'écoulement et perte de charge équivalente

Il est possible de voir sur la *Figure VI.7* que la variation de la résistance globale du coté de l'huile x est moins prononcée comparée à la variation du coté de l'eau y. En effet, comme la distribution de l'huile n'est pas trop affectée par la variation de α_x, la résistance globale subit uniquement une légère décroissance. A contrario, la résistance du coté de l'eau subit une très forte croissance, notamment lorsque le débit d'huile dépasse les 70% du débit total.

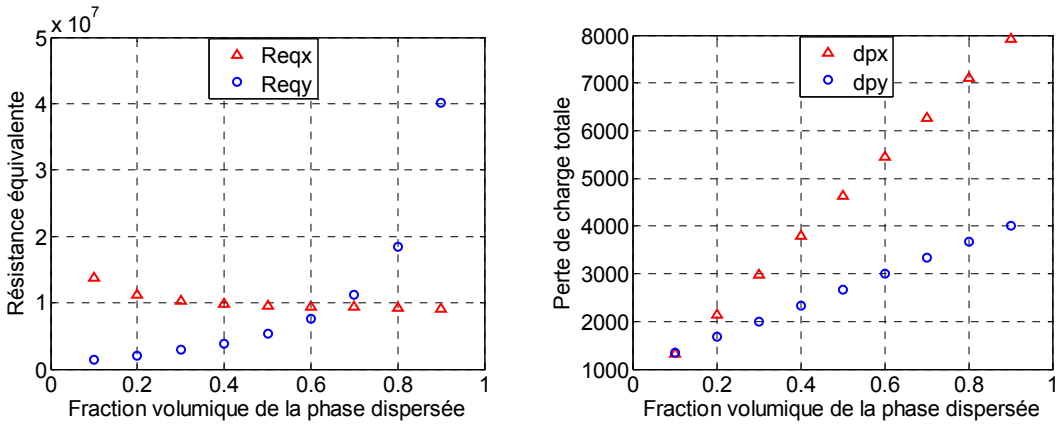


Figure VI. 7. *Evolution des résistances hydrodynamiques globales (gauche) et des pertes de charge globales [Pa](droite) en fonction de la fraction volumique α_x.*

Les courbes de pertes de charge de la *Figure VI.7* montrent également qu'il y a des effets de compensation au niveau des valeurs des deux pertes de charge Δp_x et Δp_y. En effet, pour des valeurs de $\alpha_x < 0.7$, la résistance R_{eqx} est supérieure à R_{eqy}, mais les débits coté eau sont les plus importants, donc l'écart entre les deux pertes de charge reste relativement faible. Bien que pour des valeurs de α_x supérieures à 0,7, la résistance R_{eqy} soit beaucoup plus importante que la résistance R_{eqx} (en raison de la forte maldistribution), la perte de charge coté eau reste faible devant celle du coté de l'huile. Cependant, pour ce domaine de α_x, la résistance R_{eqx} est relativement inchangée lorsque α_x varie, alors que les débits de l'huile sont les plus importants, ce qui permet de maintenir des pertes de charge plus élevées du coté de l'huile.

On peut aussi remarquer que la perte de charge augmente d'une manière linéaire en fonction du α_x, ceci est d'une part dû à la nature linéaire du modèle de perte de charge employé (relation de Poiseuille) et d'autre part au fait que les corrélations décrivant les propriétés physiques, dans ce cas d'étude, restent de nature linéaire.

VI.3.4. Dispersion gaz-liquide

Les techniques de séparation, comme par exemple l'absorption, ainsi que les réactions multi-phasiques dans des structures complexes, font souvent intervenir des écoulements gaz-liquide.

Le mélange gaz/liquide est étudié dans cette section en représentant, à titre indicatif, le liquide par les propriétés physiques de l'eau (associé à la variable y) et le gaz (associé à la variable x) par les propriétés physiques de l'azote (ρ_x = 1.25 kg/m^3 et μ_x = 1,75.10^{-5} Pa.s).

VI.3.4.1. Modélisation des écoulements gaz-liquide

Pour décrire les pertes de charge causées par le frottement en écoulement biphasique, on fait couramment appel à deux types de modèles. Les modèles de fluide homogène où les propriétés physiques du mélange sont estimées à partir des corrélations empiriques et les modèles à flux séparés où les deux phases sont supposées en écoulement séparé selon deux courants distincts (Vijayarangan et al., 2007).

Modèle homogène

Plusieurs corrélations sont proposées dans la littérature pour décrire la viscosité des mélanges gaz-liquide. Dans différents travaux effectués, les auteurs ont comparé les valeurs de pertes de charge estimées en appliquant ces corrélations empiriques par rapport aux mesures expérimentales dans différentes conditions (Yue et al., 2004, Vijayarangan et al., 2007). Le premier modèle utilisé ici est basé sur des relations linéaires (équations (V.12) et (V.13)) pour le calcul de la viscosité et de la masse volumique du mélange gaz-liquide.

Sur la *Figure VI.8* sont portées les distributions du fluide obtenues pour différentes fractions volumiques du gaz dans le mélange.

Bien que les dimensions géométriques du réseau utilisées pour effectuer le calcul des distributions correspondent au cas qui favorise une distribution uniforme du fluide (*cas B du Tableau VI.1*), des écarts importants sont obtenus entre les débits *x* de la phase dispersée. Il apparaît sur la *Figure VI.8* qu'une faible fraction volumique du gaz (α_x = *0,1)* engendre une très forte maldistribution du gaz et des instabilités dans le réseau fluidique. L'augmentation de cette fraction volumique permet de réduire les écarts de pertes de charge de part et d'autre du réseau et d'aboutir à des distributions uniformes comme celle obtenue pour α_x = *0,95*.

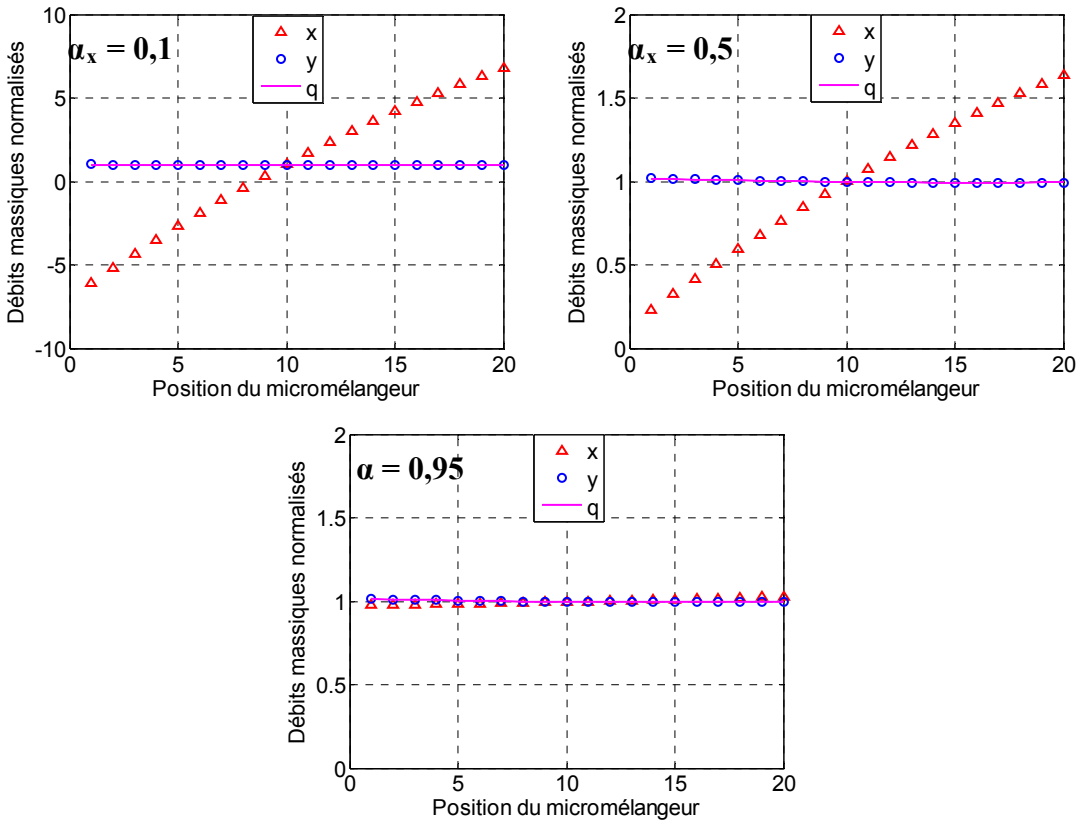


Figure VI.8. *Distribution des débits massiques normalisés pour différentes fractions volumiques, dans un système azote/eau modélisé par un modèle de perte de charge linéaire (α_x = 0,1 à gauche, α_x = 0.5 à droite et α_x = 0.95 en bas).*

Un autre modèle homogène est testé pour une fraction volumique du gaz de *95%* et une viscosité dynamique du mélange estimée à partir d'un modèle empirique de Beattie et Whalley (1982).

$$\mu_m = \mu_x \alpha_x \mu_L (1-\alpha_x)(1+2{,}5\alpha_x) \qquad \text{(VI.16)}$$

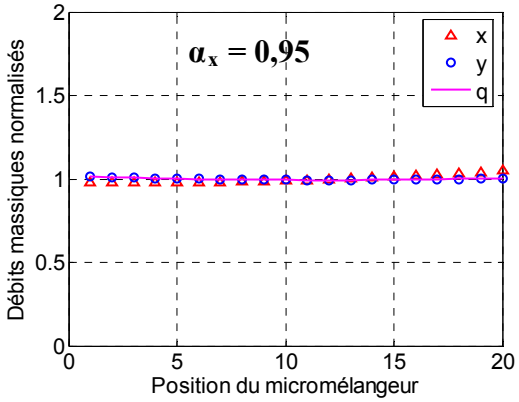


Figure VI. 9. *Distribution des débits massiques normalisés pour un système azote/eau* modélisé par un modèle de Beattie et Whalley *(α_x=0,95).*

La *Figure VI.9* représente les distributions du fluide obtenues en utilisant l'équation (16) pour décrire la viscosité de mélange gaz-liquide. Le même type de distribution est obtenu pour une fraction volumique (α_x = *0,95*). Cette fraction volumique, bien qu'elle favorise l'obtention d'une distribution uniforme, n'est pas très représentative d'un mélange gaz-liquide. Il sera plus convenable de modifier les dimensions géométriques du réseau pour compenser les différences de perte de charge responsable de cette maldistribution.

Modèle à flux séparés

Dans cette section, la perte de charge du mélange gaz-liquide est décrite par un modèle à flux séparé, mettant en relation les deux pertes de charge relatives au liquide et au gaz successivement. Lockhart and Martinelli (1949) ont décrit l'évolution du facteur Φ en fonction de X et Chisholm (1967) a proposé une corrélation pour estimer la valeur de C.

$$\left(\frac{\Delta P_f}{\Delta L}\right)_m = \Phi_L^2 \left(\frac{\Delta P_f}{\Delta L}\right)_L \qquad \text{(VI.17.1)}$$

$$\Phi_L^2 = 1 + \frac{C}{X} + \frac{1}{X^2} \qquad \text{(VI.17.2)}$$

Le facteur X^2 est calculé lorsque le liquide et le gaz se déplacent séparément dans la même conduite et sous les mêmes conditions opératoires.

$$X^2 = \frac{(\Delta P_f / \Delta L)_L}{(\Delta P_f / \Delta L)_G} \qquad \text{(VI.17.3)}$$

$$X^2 = \frac{(R_c)_L (Q_c)_L}{(R_c)_G (Q_c)_G} \qquad \text{(VI.17.4)}$$

Il vient que :

$$\Phi_L^2 = 1 + C\sqrt{\frac{(R_c)_G (Q_c)_G}{(R_c)_L (Q_c)_L}} + \frac{(R_c)_L (Q_c)_L}{(R_c)_G (Q_c)_G} \qquad \text{(VI.17.5)}$$

La perte de charge résultante s'écrit dans ce cas comme suit:

$$(\Delta P_c)_m = (R_c)_L (Q_c)_L + C\sqrt{\frac{(R_c)_G (Q_c)_G}{(R_c)_L (Q_c)_L}} (R_c)_L (Q_c)_L + (R_c)_G (Q_c)_G \qquad \text{(VI.18.1)}$$

$$(\Delta P_c)_m = (1-\varphi)(R_c)_L (Q_c)_T + C(R_c)_L \sqrt{\frac{\varphi (R_c)_G}{(1-\varphi)(R_c)_L}} (1-\varphi)(Q_c)_T + \varphi (R_c)_G (Q_c)_T \qquad \text{(VI.18.2)}$$

$$(\Delta P_c)_m = \Phi_L^2 (R_c)_L (Q_c)_L \quad \text{(VI.18.3)}$$

$$\Delta P_c = R_c Q_c \quad \text{(VI.18.4)}$$

La valeur du coefficient C dépend de la nature de régime d'écoulement correspondant à chacune des phases indépendamment. Des valeurs de 5 à 20 ont été proposées pour des mélanges gaz-liquide selon plusieurs régimes d'écoulement (C = 5 lorsque les deux fluides s'écoulent en régime laminaire). Yue et al. (2004) ont trouvé expérimentalement que les valeurs de C proposées par Lockhart et Martinelli engendrent des déviations par rapport aux résultats expérimentaux et sous-estiment la perte de charge par frottement. Une corrélation de C a été ainsi proposée et comparée avec les valeurs de C déduites expérimentalement.

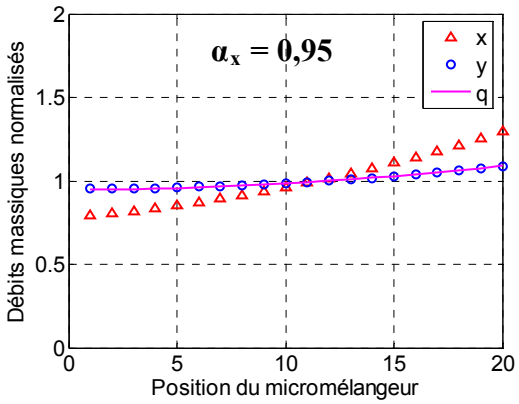


Figure VI. 9. *Distribution des débits massiques normalisés pour un système azote/eau* modélisé par un modèle à flux séparé *(α_x=0,95).*

L'influence de la nature du modèle employé peut être constatée en comparant les distributions des débits obtenues pour une fraction de 0,95 du gaz. L'écart à une équidistribution, obtenu en appliquant un modèle à flux séparés est beaucoup plus important comparé à celui obtenu en appliquant un modèle de perte de charge homogène. La modélisation avec un modèle homogène sous-estime l'effet de la fraction volumique en phase dispersée.

Les problèmes de recirculation du fluide dans le réseau de micromélangeurs sont plus accentués dans le cas d'un mélange gaz/liquide en raison des différences élevées entre les propriétés physiques qui contribuent directement dans le modèle résistif. Selon le modèle de viscosité employé pour caractériser l'écoulement gaz-liquide, les distributions du fluide à travers le réseau sont de différentes formes.

IV.3.4.2. Résistance globale à l'écoulement

Dans ce qui suit, les pertes de charges globales sont calculées en appliquant un modèle homogène de perte de charge intégrant des relations linéaires pour la viscosité et la masse volumique du mélange (équations (VI.12) et (VI.13)).

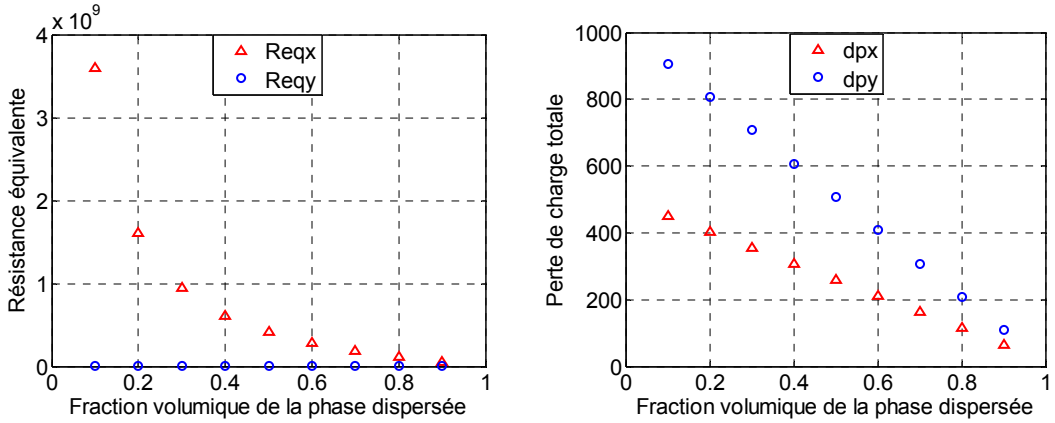


Figure VI.10. *Evolution des résistances hydrodynamiques globales (en [Pa.s/kg]) et des pertes de charge globales (en [Pa]) en fonction de la fraction volumique initiale α_x pour un système azote/eau.*

Sur la *Figure VI.10* sont portées les résistances hydrodynamiques globales et les pertes de charge globales (pour le mélange azote-eau) entre les deux entrées correspondant aux deux fluides à mélanger et la sortie commune, en fonction de la fraction volumique de la phase dispersée dans le mélangeur. Les plus faibles résistances hydrodynamiques sont enregistrées pour les plus importantes valeurs de α_x. Cependant, comme il a été déjà mentionné précédemment, la variation de la fraction de la phase dispersée engendre des distributions de fluide très différentes. Ceci agit directement sur la valeur de la résistance hydrodynamique globale. Néanmoins, en raison des différences importantes entre les propriétés physiques des deux fluides mélangés, l'augmentation de α_x favorise la distribution du fluide et par conséquent la résistance à l'écoulement. Ainsi, on peut observer que la perte de charge globale dans les deux parties du réseau diminue constamment en augmentant la fraction volumique de la phase dispersée. En effet, il s'agit ici de substituer le fluide d'une viscosité et d'une densité données par un fluide avec une viscosité et une densité beaucoup plus faibles. La viscosité du mélange corrélée par une loi linéaire se trouve alors diminuée, ce qui diminuera en conséquence la perte de charge globale dans le réseau.

On a pu voir qu'un mauvais dimensionnement du réseau de micromélangeurs peut conduire à une instabilité physique du système et par conséquent une perte dans la qualité du mélange. Ce problème peut être corrigé en adaptant les conditions géométriques aux variations des propriétés physiques du fluide

Il faut tout de même signaler que la modélisation de l'écoulement dans les réseaux de micromélangeurs effectuée ici a considéré des relations simples pour décrire les écoulements biphasiques ainsi que la variation des propriétés physiques. L'objectif principal était d'avoir un premier aperçu sur le comportement global d'un réseau de canaux mettant en jeu deux entrées de fluide. Cette étude encore exploratoire, nécessite une analyse plus approfondie du comportement physique des mélanges dans ce type de réseau en employant des mélanges spécifiques avec les contraintes géométriques associées. Néanmoins, malgré la simplicité des relations employées pour simuler le comportement du fluide, des résultats imprévisibles a priori sont constatés selon la nature du mélange et des contraintes imposées.

VI.4. Conclusion

L'examen des différentes distributions de fluide obtenues sous différentes conditions opératoires et géométriques, révèle l'importante sensibilité du comportement hydrodynamique du fluide à ces dernières. L'effet des contraintes géométriques sur la distribution du fluide à travers les différentes branches du réseau global est examiné, dans un premier temps, en simulant le mélange de deux fluides de propriétés physiques identiques. La variation du rapport volumique des phases mélangées engendre un effet majeur sur leur répartition à travers les différentes branches du réseau. Il a été constaté que le fluide circulant avec le plus faible débit volumique (faible fraction volumique) subit la plus grande maldistribution dans les branches de son système de distribution.

Pour expliquer un tel comportement, les différentes pertes de charge de part et d'autre du réseau global sont successivement calculées et comparées. L'analyse de ces pertes de charges globales montre que le fluide le plus maldistribué (donc celui avec la plus faible fraction volumique dans ce cas) est celui qui génère la plus petite contribution à la perte de charge globale. Le fluide circulant avec un débit élevé passe prioritairement dans les micromélangeurs, empêchant ainsi le passage de l'autre fluide circulant avec des débits volumiques plus faibles.

L'examen du mélange biphasique a montré que le fluide le moins visqueux est celui qui est le plus maldistribué. D'autre part, la résistance hydrodynamique globale pour ce fluide est relativement importante par rapport à celle du deuxième fluide. Cette résistance diminue au fur et à mesure que la fraction volumique de la phase dispersée augmente jusqu'à atteindre celle du deuxième fluide. En plus, les pertes de charge dans ce cas sont les plus importantes. On constate en particulier pour un écoulement gaz/liquide, que l'apparition des recirculations est d'autant plus marquée que les fractions de phase dispersée sont faibles. Il est ainsi indispensable de dimensionner des systèmes pour le mélange biphasique tenant compte des différences importantes entre les propriétés physiques des fluides à mélanger.

Des simulations plus détaillées doivent se poursuivre, aussi bien pour l'étude du mélange monophasique que pour le mélange biphasique, afin de bien cerner l'ensemble des facteurs agissant sur le comportement du réseau.

Conclusion générale

Conclusion générale

A partir de la phase de conception et jusqu'à la commercialisation, le développement des procédés microstructurés mettant en jeu des équipements de production, de transformation de matière et d'énergie doit considérer différents aspects d'ordre phénoménologique (transfert de matière, d'énergie, transformation chimique, etc.), techniques (contraintes de fabrication, d'entretien, de contrôle et commande, etc.) et économique (compacité, consommation d'énergie, etc.). Les travaux présentés dans ce manuscrit ont principalement visé à aborder ces aspects à travers l'analyse conjointe de la conception géométrique de ces équipements et des phénomènes physiques et chimiques y opérant.

Le modèle général employé pour étudier ces équipements structurés a considéré un ensemble de microcanaux associés en parallèle grâce à des systèmes de distribution et de collecte, afin de former un réseau ou module élémentaire. Plusieurs modules sont eux-mêmes associés en parallèle pour former un réseau muti-échelle plus complexe. L'effet de la structuration géométrique de ces réseaux est examiné en considérant les phénomènes hydrodynamiques couplés à des transferts physiques et des réactions.

En modélisant le réseau comme un circuit hydraulique résistif, la première analyse hydrodynamique menée sur un réseau élémentaire à deux échelles a montré que le comportement hydrodynamique du fluide est en corrélation directe avec le rapport de résistances hydrodynamiques associées à chacune de ces deux échelles. Ce rapport doit augmenter d'une façon non linéaire avec l'augmentation de nombre de canaux en parallèle pour limiter la maldistribution des flux et la perte de charge globale résultante. Ainsi, l'augmentation de ce rapport peut être essentiellement réalisée en augmentant le diamètre de la conduite de distribution par rapport au diamètre du microcanal ou encore en augmentant la longueur du microcanal par rapport à la longueur séparant deux microcanaux en parallèle. Pour un grand nombre de canaux, la première possibilité implique l'emploi d'un grand volume de distribution (création de volumes morts, changement de régime d'écoulement) tandis que la deuxième possibilité risque d'accroître les pertes de charge et par conséquent, la puissance de pompage nécessaire pour l'alimentation du réseau.

Les canaux peuvent être alors répartis sur plusieurs échelles en générant des réseaux multi-échelles. L'analyse de ces réseaux, sous un ensemble de contraintes géométriques, a révélé qu'un arrangement optimal de ces canaux permet de réduire considérablement la maldistribution interne des flux et les pertes de charge résultantes.

D'autre part, le passage d'une échelle à une autre engendre des modifications du rapport de résistances internes qui est le principal responsable de la maldistribution des flux. Il a été ainsi montré qu'un réseau à quatre échelles est plus intéressant du point de vue hydrodynamique (faible maldistribution, faible perte de charge) comparé à un réseau à trois échelles. L'analyse de

la variation de ce rapport interne, au cours de la conception des réseaux multi-échelles (c'est-à-dire l'assemblage successif des réseaux élémentaires) a permis de constater qu'il faudrait alterner le positionnement des nombres élevés de canaux sur les différentes échelles. Il est donc recommandé lors de la conception de réseaux contenant un très grand nombre de canaux, de mettre un nombre élevé de canaux en parallèle au niveau de la première échelle puis un faible nombre de canaux au niveau de l'échelle suivante, puis à nouveau un nombre plus élevé de canaux dans l'échelle d'après et ainsi de suite en alternant jusqu'à la dernière échelle.

Des abaques normalisées auxquelles sont associées des relations semi-analytiques donnant la distribution et la résistance globale du réseau en fonction du nombre de canaux et des rapports de résistances internes, ont été construites pour aider au choix de cet arrangement de canaux. Une méthodologie d'analyse hydrodynamique de ces réseaux complexes de micro-objets mettant en jeu des échelles imbriquées est ainsi retracée pour aider à leur conception, dimensionnement et caractérisation.

Les résultats de cette analyse hydrodynamique nécessitent une vérification expérimentale afin de pouvoir délimiter les domaines de validité des différentes approximations effectuées. La technique expérimentale qui consiste à suivre l'écoulement d'un traceur dans un circuit fluidique multi-échelle, gravé sur des plaques transparentes, a permis de confirmer un certain nombre de résultats numériques.

Ainsi, à partir des courbes de distribution des concentrations d'un traceur issues du traitement numérique des images d'écoulement, il a été possible de déterminer le temps de séjour moyen dans les différents canaux d'un réseau fluidique élémentaire. En comparant les distributions du fluide déterminées numériquement avec celle obtenues expérimentalement, un bon accord qualitatif et quantitatif a été noté pour des faibles nombres de Reynolds. On a principalement confirmé l'impact du rapport de résistances internes sur la distribution du fluide dans ce type de réseau. Néanmoins, des effets de pertes de charge singulières sont susceptibles d'apparaître même aux faibles nombres de Reynolds (de l'ordre de 10). Il reste cependant difficile d'isoler précisément ces effets des incertitudes expérimentales afin de les quantifier. Un plan expérimental plus élaboré et plus détaillé est nécessaire pour cette fin.

En se basant sur les résultats hydrodynamiques, une analyse du transfert thermique entre le fluide et la paroi isotherme des configurations multi-échelles est réalisée. L'influence de la structuration des flux sur l'efficacité thermique de l'équipement est simulée en employant le concept du Nombre d'Unités de Transfert. Des échangeurs à deux échelles utilisant un nombre variable de canaux avec des conduites de distribution et de collecte de différentes dimensions, tout en conservant une surface d'échange globale constante, sont ainsi analysés.

Les résultats montrent qu'en régime d'écoulement thermiquement établi et lorsque les effets d'entrée sont négligés, le coefficient d'échange global d'un réseau à deux échelles ne dépend pas du débit initial et augmente linéairement avec l'augmentation du nombre de canaux en parallèle. Ce comportement est valable lorsque l'échange thermique se fait principalement

dans les microcanaux (faible contribution des systèmes de distribution et de collecte) et ce pour une maldistribution n'excédant pas 50%. D'autre part, les caractéristiques thermiques des réseaux à trois et à quatre échelles mettant en jeu un même nombre de microcanaux en parallèle, ont été comparées sur la base d'un critère hydrothermique défini comme étant le rapport entre la puissance thermique et la puissance mécanique associée aux systèmes. Il est ainsi illustré que pour ce type de transfert thermique, les réseaux à quatre échelles sont plus intéressants hydrothermiquement que les réseaux à trois échelles.

Les performances des réseaux multi-échelles sont ensuite étudiées en considérant la sélectivité d'une réaction consécutive catalytique se déroulant sur les parois des microcanaux imprégnées par un catalyseur. L'impact de l'arrangement des canaux sur le rendement global du réacteur catalytique est analysé. On a pu constater que la déviation du rendement du produit désiré n'est considérable qu'à partir d'une maldistribution supérieure à environ 60%. Par conséquent, les géométries à quatre échelles où la maldistribution des débits est la moins importante présentent, à nouveau, les meilleures performances globales du réseau comparées à celles à trois échelles.

Ces deux applications des réseaux multi-échelles ont toutes les deux révélé que l'effet de la non-uniformité des flux thermiques et massiques devient important à partir d'une maldistribution d'environ 50%, ce qui laisse une marge de tolérance d'une éventuelle maldistribution. Cependant, cette dernière ne doit pas être liée à une conception non appropriée, mais plutôt à des effets d'origines inconnues. En effet, il est important que les systèmes soient conçus pour que théoriquement la maldistribution soit minimale afin que les effets non maîtrisés (par exemple, changements de propriétés du fluide, défauts de fabrications, encrassement de canaux,…), soient couverts par cette marge.

Il faut tout de même préciser que l'impact de la maldistribution des flux peut parfois conduire à un changement irréversible des conditions opératoires. Ceci peut être dramatique lorsque l'opération réalisée dans l'équipement est très sensible à une fluctuation interne.

Un dernier axe de ce manuscrit présente une introduction à l'étude de réseaux de micromélangeurs en forme de Y, permettant le contact de fluides de différentes natures. En effet, en plus de ses applications en mélange, ce type de réseau mobilisant deux entrées différentes de fluides, trouve de nombreuses autres applications en procédés. Il peut être le siège de réactions chimiques, comme il peut représenter un support de contact pour des opérations unitaires comme l'extraction, l'absorption, etc.

Le principal résultat dégagé est lié à la forte influence du rapport volumique des deux fluides impliqués sur leur distribution à travers les différents canaux du réseau. Il ressort que le fluide circulant avec la plus importante perte de charge, subit la plus faible maldistribution des débits, comparé au deuxième fluide qui sera très fortement maldistribué.

La différence de perte de charge est d'une part causée par le rapport de débits considéré et d'autre part par la différence entre les propriétés physiques des fluides employés. Le

dimensionnement de ce type de réseau doit donc tenir compte de ces différences en adaptant les dimensions géométriques aux conditions opératoires du fonctionnement. Un dimensionnement complexe impliquant des critères très spécifiques aux applications est indispensable afin d'optimiser la performance de ces réseaux de micromélangeurs. De plus, ce dimensionnement ne doit pas rester essentiellement théorique mais nécessite un travail expérimental complémentaire de validation.

Perspectives

Comme on a pu le constater au long de ce manuscrit, le dimensionnement et le fonctionnement de ces réseaux multi-échelles fait intervenir de nombreux paramètres au niveau du micro-objet lui même ainsi qu'au niveau des réseaux de micro-objets. La complexité de ces réseaux incite à approfondir plusieurs points issus de leur caractérisation numérique:

- L'analyse numérique des réseaux de canaux répartis sur trois ou quatre échelles a montré que l'agencement des canaux peut générer différentes caractéristiques sur le plan hydrodynamique, physique et chimique. Des simulations précises par mécanique des fluides numérique sont recommandées pour comparer le comportement du fluide dans une configuration optimale avec celui se manifestant dans une autre configuration où les canaux sont aléatoirement répartis
- Il serait aussi intéressant de tester différentes contraintes opératoires (différentes gammes de débits, différentes formes géométriques de canaux,…) et d'examiner leurs impact sur le fonctionnement global du réseau.
- Une confirmation expérimentale de ces résultats, permet non seulement de vérifier les limites de validité du modèle résistif dans un réseau à plusieurs échelles mais aussi de confirmer les différentes relations hydrodynamiques entre les variables imbriquées dans le réseau (nombre de canaux par échelle, répartition des canaux, rapport de résistances internes, etc.). Des tests de robustesse peuvent aussi être effectués sur le même montage expérimental en considérant des plaques contenant quelques canaux bouchés.
- En réalisant des mesures expérimentales de propriétés globales comme l'efficacité thermique et le rendement d'une réaction dans des réseaux multi-échelles fabriqués avec le matériau approprié, il sera possible d'établir des relations expérimentales entre la maldistribution et son effet sur les performances globales du réseau.
- L'analyse de la parallèlisation des micromélangeurs, encore très exploratoire, nécessite l'appui de simulations plus approfondies ainsi que celui d'une caractérisation expérimentale appropriée.
- L'impact de la maldistribution des flux est lié à la nature de l'opération réalisée dans le réseau. Des exemples plus complexes, comme par exemple un transfert thermique entre deux fluides différents (donc deux réseaux multi-échelles) ou des réactions avec des cinétiques différentes, sont à considérer dans le cas d'une éventuelle extrapolation du procédé.

- Des aspects de sécurité liés aux possibilités d'emballement thermique d'un réacteur à cause d'une éventuelle maldistribution ou encore au déroulement d'une réaction (comme une polymérisation inappropriée) dans des conditions opératoires non désirées, doivent être considérés pour le dimensionnement de ces équipements.
- Il est aussi important d'étudier les phénomènes physiques et chimiques dans les réseaux multi-canaux en considérant un écoulement turbulent afin d'évaluer les impacts d'une mauvaise structuration des flux sur les performances globales du procédé.

Les travaux à venir doivent être orientés dans une optique essentiellement expérimentale. Les techniques de mesure doivent être en phase avec les techniques de fabrication afin de soulever les différentes contraintes expérimentales.

Nomenclature

A_t : aire globale d'échange.

C_{ij} : Concentration molaire des espèces (j = A, B, C) sur la paroi catalytique du canal *i.*

C_p : Capacité calorifique du fluide à la température moyenne entre T_0 et T_p.

D_i : Diamètre du canal de l'échelle 'i' [m].

D_A : Coefficient de dispersion axiale.

D_m : Coefficient de diffusion moléculaire [$m^2.s^{-1}$].

dv: Déviation du rendement par rapport à sa valeur optimale [%].

f_b : Facteur de bouchage.

h : Coefficient de transfert global [$W.m^{-2}.K^{-1}$].

k_1: Constante de vitesse de la première réaction du premier ordre [s^{-1}].

K_1: Rapport entre les constantes cinétiques et les constantes de transfert correspondantes pour la première réaction.

k_2: Constante de vitesse de la deuxième réaction du premier ordre [s^{-1}].

K_2: Rapport entre les constantes cinétiques et les constantes de transfert correspondantes pour la deuxième réaction.

k_d: Coefficient de transfert de matière [$m.s^{-1}$].

L_i : Longueur du canal de l'échelle 'i' [m].

Md : Maldistribution du fluide calculée entre le minimum et le maximum des débits circulant en parallèle dans le réseau [%].

n : nombre total de canaux en parallèle dans le réseau.

n_i: nombre de canaux en parallèle à l'échelle *i*.

Nu'_i : Nombre de Nusselt dans les canaux du collecteur.

Nuc_i : Nombre de Nusselt dans les microcanaux en parallèle.

Nu_i : Nombre de Nusselt dans les canaux du distributeur.

$NUTc_i$: Nombre d'Unités de Transfert dans les microcanaux en parallèle.

NUT_i : Nombre d'Unités de Transfert dans les canaux du distributeur.

NUT_i' : Nombre d'Unités de Transfert dans les canaux du collecteur.

NUT_G : Nombre d'unités de transfert global.

P_i : Puissance hydrodynamique à travers le canal numéro i [W].

P_t : Puissance hydrodynamique totale [W].

q : Débits circulant dans les microcanaux de la première échelle [m^3/s].

Q : Débits circulant dans les portions de conduite du distributeur [m^3/s].

Q': Débits circulant dans les portions de conduite du collecteur [m^3/s].

R_1 : Résistance à l'écoulement dans le microcanal de la première échelle [Pa.s/m^3].

$R_{1.2}$: Résistance hydrodynamique équivalente d'un réseau de canaux à deux échelles [Pa.s/m^3].

$R_{1.i}$: Résistance globale à travers le réseau composé de m échelles (i = 1, m) [Pa.s/m^3].

R_i : Résistance à l'écoulement dans le microcanal de l'échelle '*i*' [Pa.s/m^3].

$r_{i.i+1}$: Rapport de résistances associé à l'échelle numéro i et l'échelle numéro (i+1).

Req_x : Résistance équivalente en passant par les branches *x* dans le réseau de micromélangeurs [Pa.s/kg].

Req_y : Résistance équivalente en passant par les branches *y* dans le réseau de micromélangeurs [Pa.s/kg].

T'_i : Température à la sortie de la i^{eme} portion du collecteur.

Tc_i : Température à la sortie de $i^{éme}$ microcanal en parallèle.

T_i : Température à la sortie de la i^{eme} portion du distributeur.

v(i) : Volume d'une conduite au niveau de l'échelle *i* [m^3].

V_{eff} : Volume effectif [m^3].

w(i) : Débits massiques circulant dans les portions de la conduite de distribution alimentant les micromélangeurs en fluide 2 [$kg.s^{-1}$].

x(i) : Débits massiques de la phase dispersée (fluide 1) circulant dans les micromélangeurs en Y [$kg.s^{-1}$].

y(i) : Débits massiques de la phase continue (fluide 2) circulant dans les micromélangeurs en Y [$kg.s^{-1}$].

z(i) : Débits massiques circulant dans les portions de la conduite de distribution alimentant les micromélangeurs en fluide 1 [$kg.s^{-1}$].

Nombres adimensionnels

Re : Nombre de Reynolds $Re = \frac{4.\rho.Q_{canal}}{\pi.\mu.D_{canal}}$ pour un écoulement d'eau en conditions standards.

Sh: Nombre de Sherwood $Sh = \frac{D_{canal}.k_d}{D_m}$.

Lettres grecques

ΔP : Perte de charge globale générée par frottement dans un réseau de canaux multi-échelles [Pa].

ΔP^*: Perte de charge normalisée.

ΔP_x: Perte de charge globale en passant par les branches x dans le réseau de micromélangeurs [Pa].

ΔP_y: Perte de charge globale en passant par les branches y dans le réseau de micromélangeurs [Pa].

η'_i : Efficacité thermique dans les canaux du collecteur [%].

ηc_i : Efficacité thermique dans les microcanaux en parallèle [%].

η_i : Efficacité thermique dans les canaux du distributeur [%].

λ : Conductivité thermique du fluide à la température moyenne [$W.m^{-1}.K^{-1}$].

μ : Viscosité dynamique du fluide [Pa.s].

ρ : Masse volumique du fluide à la température moyenne [$kg \cdot m^{-3}$].

σ : Ecart type normalisé par la moyenne des débits.

τ^{opt}: Temps de passage optimal dans le microcanal enduit par le catalyseur [s].

Références bibliographiques

Aartun, I., Gjervan, T., Venvik, H., Görke, O., Pfeifer, P., Fathi, M., Holmen, A., Schubert, K. (2004). Catalytic conversion of propane to hydrogen in microstructured reactors. *Chemical Engineering Journal, 101, 93-99.*

Ajmera, S.K., Delattre, C., Schmidt, M.A., Jensen, K.F. (2002). Microfabricated cross-flow chemical reactor for catalyst testing. Sensors and Actuators, B: *Chemical 82 (2-3), 297-306*.

Amador, C., Gavriilidis, A., Angeli, P. (2004). Flow distribution in different microreactor scale-out geometries and the effect of manufacturing tolerances and channel blockage. *Chemical Engineering Journal, 101, 379-390.*

Aoki, N., Hasebe, S., Mae, K. (2005). Geometric Design of Fluid Segments in Microreactors Using Dimensionless Numbers. *AIChE Journal, Vol. 52, No. 4.*

Aubin, J., Xuereb, C. (2008). Microréacteurs pour l'industrie, *Technique de l'ingénieur, IN94*.

Baier, T., Kolb, G. (2007). Temperature control of the water gas shift reaction in microstructured reactors, *Chemical Engineering Science 62, 4602-4611*.

Bassiouny, M.K., Martin, H. (1984). Flow distribution and pressure drop in plate heat exchanger: I, U-type arrangement, *Chemical Engineering Science,* 39, 693-700.

Bassiouny, M.K., Martin, H. (1984). Flow distribution and pressure drop in plate heat exchanger: II, Z-type arrangement, *Chemical Engineering Science. 39, 701-704.*

Bejan, A. (1997). Constructal theory network of conducting paths for cooling a heat generating volume. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 40, 799-816.

Bejan, A. (2000a). From heat transfer principles to shape and structure in Nature. *Journal of Heat Transfer. Transactions of ASME 122*, 430-449.

Bejan, A., Rocha, L.A., Lorente, S. (2000b). Thermodynamic optimization of geometry: T and Y-shaped constructs of fluid streams. *International Journal of Thermal Sciences* 39, 949-960.

Bejan, A., Tondeur, D. (1998). Equipartition, optimal allocation, and the constructal approach to predicting organization in Nature. *Revue Générale de Thermique* 37, 165-180.

Cao, E., Gavriilidis, A. (2005). Oxidative dehydrogenation of methanol in a microstructured reactor, *Catalysis Today 110, 154-163*.

Charpentier, J.C. (2007). In the frame of globalization and sustainability, process intensification, a path to the future of chemical and process engineering. *Chemical Engineering Journal, 134, 84-92.*

Chen, G., Li, S., Jiao, F., Yuan, Q. (2007). Catalytic dehydration of bioethanol to ethylene over TiO2/g-Al2O3 catalysts in microchannel reactors. *Catalysis Today, 125, 111-119.*

Chen, Y.P., Cheng, P. (2002). Heat transfer and pressure drop in fractal tree-like microchannel nets. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 45, 2643-2648.

Chen, Y.P., Cheng, P.(2005). An experimental investigation on the thermal efficiency of fractal tree-like microchannel nets. *International Communications in Heat and Mass Transfer 32, 931-938.*

Commenge, J.M. (2001). Réacteurs microstructurés : hydrodynamique, thermique, transfert de matière et applications aux procédés, *Thèse INPL, Nancy, France*.

Commenge, J.M., Falk, L., Corriou, J.-P., Matlosz, M. (2005). Analysis of microstructured reactor characteristics for process miniaturization and intensification, *Chemical Engineering Technology, 28, 4, 446-458.*

Commenge, J.M., Falk, L., Corriou, J.P., Matlosz, M. (2002). Optimal design for flow uniformity in microchannel reactors. *AIChE. 48, 345-358*.

Damköhler, G. (1937) in: Eucken, A., Jakob, M., (Eds.). Der Chemie-Ingenieur, Band III, Akademische Verlagsgesellschaft, *Leipzig, p. 359*.

De Mas, N., Günther, A., Kraus, T., Schmidt, M.A., Jensen, K.F. (2005). Scaled-Out Multilayer Gas-Liquid Microreactor with Integrated Velocimetry Sensors. *Industrial-Engineering Chemistry, 44, No. 24. 8997-9013.*

Delsman, E.R., de Croon, M.H.J.M., Elzinga, G.D., Cobden, P.D., Kramer, G.J., Schouten, J.C. (2005). The influence of differences between microchannels on microreactor performance, *Chemical Engineering and Technology 28, 367-375.*

Dietrich,T.R. (2009). Microchemical engineering in practice, *A JOHN WILEY & SON, INC., Publication, 325-347.*

Ehrfled, W., Hessel, V., Löwe, H. (2000). Microreactors: New Technology for Modern Chemistry, Edition*, Wiley-VCH*.

Escher W., Michel, B., Poulikakos, D. (2008). Efficiency of optimized bifurcating tree-like and parallel microchannel networks in the cooling of electronics, *International Journal of Heat and Mass Transfer, 1421-1430.*

Fitz, C. W., King, D. W., Kunesh, J. G. (1999). Controlled liquid maldistribution studies on structured packing. *Transactions of the Institution of Chemical Engineers, 77, 482-486*.

Gad-El-Hak, M. (2001). The MEMS Handbook, *CRC Press*.

Giornelli, T., Löfberg, A., Guillou, L., Le Courtois, V., Bordes-Richard, E. (2007). Catalytic wall reactor: Catalytic coatings of stainless steel by VOx/TiO2 and Co/SiO2 catalysts. *Catalysis Today 128, 201-207.*

Görke, O., Pfeifer, P., Schubert, K. (2005). Highly selective methanation by the use of a microchannel reactor, *Catalysis Today,* 110, 132-139.

Heibel, A.K., Scheenen, T.W.J., Heiszwolf, J.J., Van As, H., Kapteijn, F., Moulijn, J.A. (2001). Gas and liquid phase distribution and their effect on reactor performance in the monolith film flow reactor. *Chemical Engineering Science, 56, 5935-5944.*

Heibel, A.K., Vergeldt, F.J., Van As, H., Kapteijn, F., Moulijn, J., Boger, T. (2003). Gas and Liquid Distribution in the Monolith Film Flow Reactor. *AIChE Journal, 49, 3007-3017*.

Hessel, V., Angeli, P., Gavriilidis, A., Lwe, H. (2005). Gas-Liquid and Gas-Liquid-Solid Microstructured Reactors: Contacting Principles and Applications Ind. Eng. Chem. Res, 44.

Hessel, V., Hardt, S., Löwe, H. (2004). Chemical Micro Process Engineering Fundamentals, Modelling and Reaction, *Wiley-VCH, Weinheim*.

Jâhnisch, K., Baerns, M., Hessel, V., Ehrfeld, W., Haverkamp,V., Lôwe, H., Wille, C., Guber, A. (2000). Direct Fluorination of Toluene Using Elemental Fluorine in Gas/Liquid Microreactors. J. Fluorine Chem, 105, 117-128.

Janicke, M T., Kestenbaum, H., Hagendorf, U., Schüth, F., Fichtner, M., Schubert, K. (2000). The Controlled Oxidation of Hydrogen from an Explosive Mixture of Gases Using a Microstructured Reactor/Heat Exchanger and Pt/Al2O3 Catalyst. *Journal of Catalysis 191, 282-293.*

Kadowaki, M., Yamamoto, A., Mori, S., Suzuki, M. (2007). Modeling of plasma CVD on the inner surface of a microchannel, Thin Solid Films, 515, 4197- 4202.

Kikas, N.P.(1995). Laminar flow distribution in solar systems. *Solar Energy, 54, 209-217*.

Kikutani, Y., Hibara, A., Uchiyama, K., Hisamoto, H., Tokeshi, M., Kitamori, T. (2002). Pile-Up Glass Microreactor, *Lab Chip, 2, 193-196.*

Kim, G.Y., Mayor, J.R., Ni, J. (2005). Parametric study of microreactor design for water gas shift reactor using an integrated reaction and heat exchange model. *Chemical Engineering Journal, 110, 1-10.*

Kiwi-Minsker, L., Wolfrath, O., Renken, A. (2002). Membrane reactor microstructured by filamentous catalyst. *Chemical Engineering Science 57, 4947-4953.*

Kohl, M.J., Abdel-Khalik, S.I., Jeter, S.M., Sadowski, D.L. (2005a). A microfluidic experimental platform with internal pressure measurements. *Sensors and Actuators A, 118, 212-221.*

Kohl, M.J., Abdel-Khalik, S.I., Jeter, S.M., Sadowski, D.L. (2005a). An experimental investigation of microchannel flow with internal pressure measurements**.** *International Journal of Heat and Mass Transfer, 48, 1518-1533*.

Krtschil, U., Benaskar, F., Hessel, V., Löb, P. (2008). Intensified Kolbe-Schmitt synthesis using continuous microreactor processing, reactive ionic liquids and microwave heating, *VDI Berichte, 2039, 117-124.*

Lallemand, A. (2001). Écoulement des fluides - Écoulements en conduites, Réseaux, *Techniques de l'Ingénieur, BE8161*.

Lalot, S., Florent, P., Lang, S.K., Bergles, A.E., (1999). Flow maldistribution in heat exchangers, *Applied Thermal Engineering, 19, 847-863*.

Lee, D.H., Macchi, A., Grace, J.R., Epstein, N. (2001). Fluid maldistribution effects on phase holdups in three-phase fluidized beds, *Chemical Engineering Science, 56, 6031-6038.*

Li, J., Kleinstreuer, C. (2008). Thermal performance of nanofluid flow in microchannels, *Heat and Fluid Flow, 29, 1221-1232.*

Luo, L., Fan, Z., Le Gall, H., Zhou, X., Yuan, W. (2008). Experimental study of constructal distributor for flow equidistribution in a mini crossflow heat exchanger (MCHE). *Chemical Engineering and Processing, 47, 229-236.*

Markowz, G., Schirrmeister, S., Albrecht, J., Becker, F., Schütte, R., Caspary, K. J., Klemm, E. (2005). Microstructured reactors for heterogeneously catalyzed gas-phase reactions on an industrial scale. Chem. Eng. Technol, 28, 4, 459-464.

Matlosz, M., Commenge, J. M. (2002). From process miniaturization to structured multiscale design: the innovative, high-performance chemical reactors of tomorrow. Chimia, 56, 11, 654-656.

Meille, V. (2006), Review on methods to deposit catalysts on structured surface. Applied Catalysis A: General, 315, 1-17.

Midoux, N. (1993). Mécanique et rhéologie des fluides en génie chimique, Lavoisier *TEC & DOC, Paris*.

Mies, M.J.M., Rebrov, E. V., Deutz, L., Kleijn, C. R., de Croon, M. H. J. M., Schouten, J.C. (2007). Experimental Validation of the Performance of a Microreactor for the High Throughput Screening of Catalytic Coatings, *Ind. Eng. Chem. Res., 46, 3922-3931*.

Mies, M.J.M., Rebrov, E. V., Schiepers, C.J.B.U., de Croon, M. H. J. M., Schouten, J.C. (2007), High-throughput screening of Co-BEA and Co-ZSM-5 coatings in the ammoxidation of ethylene to acetonitrile in a microstructured reactor, *Chemical Engineering Science 62, 5097-5101.*

Mills, P.L., Quiram, D.J., Ryley, J.F. (2007). Microreactor technology and process miniaturization for catalytic reactions: A perspective on recent developments and emerging technologies. *Chemical Engineering Science, 62, 6992-7010*.

Ordonez, J.C., Bejan, A., Cherry, R.S. (2003). Designed porous media: Optimally nonuniform flow structures connecting one point with more points. *International Journal of Thermal Sciences,* 42, 857-870.

Pfeifer, P., Schubert, K., Liauw, M.A., Emig, G. (2004). PdZn catalysts prepared by washcoating microstructured reactors, *Chemical Engineering Journal, 101, 93-99.*

Prabhakara Rao, B., Krishna Kumar, P., Das, S.K. (2002). Effect of flow distribution to the channels on the thermal performance of a plate heat exchanger, *Chemical Engineering and Processing, 41, 49-58.*

Rebrov, E. V., Ismagilov, I. Z., Ekatpure, R. P., de Croon, M. H. J. M., Schouten, J. C. (2007) Header design for flow equalization in microstructured reactors, *AIChE Journal, 53*, 28-38.

Rebrov, E.V., Duinkerke, S.A., de Croon, M.H.J.M., Schouten, J.C. (2003). Optimization of heat transfer characteristics, flow distribution, and reaction processing for a microstructured reactor/heat-exchanger for optimal performance in platinum catalyzed ammonia oxidation. *Chemical Engineering Journal, 93, 201-216.*

Renken, A., Hessel, V., Löb, P., Miszczuk , R., Uerdingen, M., Kiwi-Minsker, L. (2007). Ionic liquid synthesis in a microstructured reactor for process intensification. *Chemical Engineering and Processing, 46, 840-845.*

Rohsenow, W.M., Hartnett, J. R., Cho, Y. I. (1998). Handbook of Heat Transfer, Third Edition, *MCGRAW-HILL, Chapter 17, Heat exchangers*.

Saber, M., Commenge, J.M., Falk, L. (2009). Rapid design of channel multi-scale networks with minimum flow maldistribution. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, *48, 723-733.*

Saber, M., Commenge, J.M., Falk, L. (2009). Microreactor numbering-up in multi-scale networks for industrial-scale applications: Impact of flow maldistribution on the reactor performances. *Chemical Engineering Science (sous presse).*

Schuster, A., Sefiane, K. Ponton, J. (2008). Multiphase mass transport in mini/micro-channels microreactor. *Chemical Engineering Research and Design, 86, 527-534.*

Schwarz, O., Frank, B., Hess, C., Schomäcker, R. (2008). Characterisation and catalytic testing of VOx/Al2O3 catalysts for microstructured reactors. *Catalysis Communications (9) 229-233.*

Sebastian, V., de la Iglesia, O., Mallada, R., Casado, L., Kolb, G., Hessel, V., Santamarıa, J. (2008). Preparation of zeolite films as catalytic coatings on microreactor channels. *Microporous and Mesoporous Materials, 115, 147-155.*

Senkan, S. M., Ozturk, S. (1999). Discovery and optimization of heterogeneous catalysts using combinatorial chemistry. *Angew. Chem. Int. Ed., 38, 791-795*.

Senkan, S., Krantz, K., Ozturk, S., Zengin, V., Onal, I. (1999). High-throughput testing of heterogeneous catalyst libraries using array microreactors and mass spectrometry. *Angew. Chem. Int. Ed., 38, 2794-2799.*

Seris, E.L.C., Abramowitz, G., Johnston, A.M., Haynes, B.S. (1996), Scaleable, microstructured plant for steam reforming of methane, *Chemical Engineering Journal 135S, S 9- S16.*

Silva, G., Leal, N., Semiao, V. (2008). Micro-PIV and CFD characterization of flows in a microchannel: Velocity profiles, surface roughness and Poiseuille numbers. *International Journal of Heat and Fluid Flow, 1211-1220.*

Srihari, N., Das, S. K. (2008). Transient response of multi-pass plate heat exchangers considering the effect of flow maldistribution. *Chemical Engineering and Processing, 47, 695-707.*

Stefanidis G.D., Vlachos, D.G. (2008). Millisecond Methane Steam Reforming Via Process and Catalyst Intensification, Chem. Eng. Technol, 31, 1201-1209.

Tondeur, D., Luo L. (2004). Design and scaling laws of ramified fluid distributors by the constructal approach. *Chem. Eng. Sci.59, 1799-1813.*

Tonomura, O., Tanaka, S., Noda, M., Kano, M., Hasebe, S.et Hashimoto, I., (2004). CFD-based optimal design of manifold in plate-fin microdevices. *Chem. Eng. J, 101, 397-402.*

Villermaux, J. (1993). Génie de la réaction chimique, conception et fonctionnement des réacteurs *Te c&Doc - LAVOISIER.*

Walter, St., Malmberg, St., Schmidt, B., Liauw, M.A. (2005). Mass transfer limitations in microchannel reactors. *Catalysis Today 110, 15-25*.

Wang, J., Liu, G., Xiong, Y., Huang, X., Guo, Y., Tian, Y. (2008). Fabrication of ceramic microcomponents and microreactor for the steam reforming of ethanol, *Microsystem Technologies 14, 1245-1249.*

Wang, Y.F., Mao, Z.S., Chen, J.(1998). A new instrumentation for measuring the small scale maldistribution of liquid flow in trickle beds. *Chemical Engineering Communications 163, 233-244.*

Watts, P., Haswell, S.J. (2005). The application of micro reactors for organic synthesis, *Chem. Soc. Rev. 235-246.*

Xie, X.L., Liu, Z.J., He, Y.L., Tao, W. Q. (2009). Numerical study of laminar heat transfer and pressure drop characteristics in a water-cooled minichannel heat sink, *Applied Thermal Engineering, 29, 64-74.*

Yube, K., Furuta, M., Aoki, N., Mae, K. (2007). Control of selectivity in phenol hydroxylation using microstructured catalytic wall reactors. *Applied Catalysis A: General 327, 278-286.*

Annexes

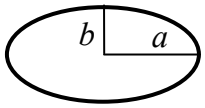
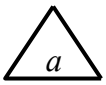
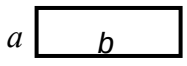
Annexe.A. Résistance hydrodynamique et perte de charge singulière

L'analyse hydrodynamique des réseaux multi-échelles en utilisant un modèle résistif peut être généralisée pour l'étude de la parallélisation d'objets de différentes formes géométriques, à condition que l'écoulement dans chaque objet soit linéairement relié à la perte de charge correspondante. Le prédimensionnement du réseau d'objets en parallèle aiderait alors à estimer les facteurs géométriques et physiques contrôlant les caractéristiques globales du réseau. La présente annexe donne quelques informations complémentaires sur le calcul des résistances hydrodynamiques linéaires ainsi que sur le calcul des pertes de charge singulières.

A.1. Résistances hydrodynamiques

En écoulement isotherme et laminaire et en absence de singularités, les résistances hydrodynamiques caractérisant les frottements à travers des microcanaux de différentes sections régulières sont reportées dans le tableau suivant:

Tableau A.1. *Résistances hydrodynamiques à travers des canaux lisses de différentes sections régulières.*

Section du canal	***Résistance hydrodynamique***
	$\frac{8.\mu.L}{\pi.a^4}$
	$\frac{4.\mu.L}{\pi.a^4}.\frac{1+(b/a)^2}{(b/a)^3}$
	$\frac{320.\mu.L}{\sqrt{3}.\pi.a^4}$
	$\frac{12.\mu.L}{1-0.63(a/b)}.\frac{1}{a^3.b}$
	$\frac{12.\mu.L}{1-0.917_x0.63}.\frac{1}{a^4}$

A.2. Equations de pertes de charge singulières

Dans cette section, les différentes pertes de charge singulières générées à travers les différentes ramifications d'un réseau élémentaire à deux échelles sont représentées ci après.

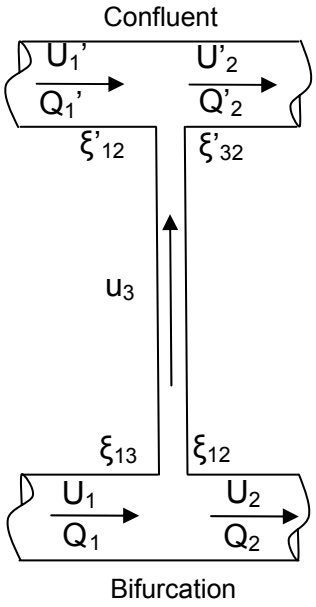


Figure A.1*. Coefficients de singularités au niveau des bifurcations et des confluents.*

Les modèles semi-empiriques utilisés pour le calcul des coefficients de perte de charge sont issus des études effectuées sur les macro-écoulements dans des conduites cylindriques. Dans les différentes bifurcations (*Figure A.1*), les pertes de charges singulières sont estimées en utilisant les expressions suivantes (Midoux, 1996):

$$\Delta p_{13} = \frac{\rho U_1^2}{2}\zeta_{13} = \frac{\rho U_1^2}{2}\left(1 + \frac{u_3^2}{U_1^2}\right) \tag{A.1.1}$$

$$\Delta p_{12} = \frac{\rho U_1^2}{2}\zeta_{12} = \frac{\rho U_1^2}{2}0.4\left(1 - \frac{U_2}{U_1}\right)^2 \tag{A.1.2}$$

Dans les différents confluents (*Figure A.1*), les expressions suivantes sont utilisées:

$$\Delta p_{32} = \frac{\rho U_2^2}{2}\zeta_{32} = a\left(1 + \frac{u_3^2}{U_2^2} - 2\left[1 - \frac{q_3}{Q_2}\right]^2\right) \tag{A.1.3}$$

$$\Delta p_{12} = \frac{\rho U_2^2}{2}\zeta_{12} = \frac{\rho U_2^2}{2}\left(1-\left[1-\frac{q_3}{Q_2}\right]^2\right) \qquad \text{(A.1.4)}$$

Ces équations décrivant les pertes de charge singulières ont été introduites dans les bilans de matière et de perte de charge pour tenir compte de l'effet de l'ensemble des pertes de charge à travers le réseau de canaux à deux échelles (§ II.4.2). On a abouti par la suite à un système d'équations non linéaires qu'on a résolu numériquement en utilisant la méthode de Newton-Raphson pour déterminer les débits dans tous les canaux du réseau. Par ailleurs, la résolution de ces équations pour des réseaux multi-échelles plus complexes reste très difficile, notamment lorsque des phénomènes physiques sont considérés.

L'analyse numérique de ces réseaux multi-échelles a été effectuée en assimilant ces derniers à des circuits hydrauliques résistifs et en considérant plusieurs hypothèses simplificatrices. Elle a été plus focalisée sur les paramètres géométriques définissant le réseau plutôt que sur les phénomènes physiques susceptibles de se présenter aux petites échelles. Il est cependant important, une fois le prédimensionnement effectué, de réaliser des simulations fines et des expériences complémentaires incluant des comportements locaux (des effets de rugosité, de tension de surface,…), afin d'affiner et d'optimiser le réseau présélectionné.

Annexe.B. Etude du bouchage dans des structures multi-échelles

B.1. Robustesse d'un réseau à deux échelles

On s'intéresse ici à l'analyse de la robustesse hydrodynamique en présence d'un bouchage, d'une configuration à 50 canaux parallèles et présentant, à titre d'exemple, les dimensions géométriques suivantes (*Figure II.2*):
D_1= 0.001 m ; $D_2 = 5.D_1$; $L_1 = 20D_1$; $L_2 = 2D_1$

B.1. 1. Taux de bouchage

On étudie dans cette section la réponse hydrodynamique à un bouchage partiel (dans le canal *N°15*) de la structure à deux échelles. Les évolutions de la maldistribution interne ainsi que de la perte de charge totale calculée pour un débit $Q_0 = 10^{-5}m^3/s$, sont représentées sur la *Figure B.1*. Il convient de rappeler que la distribution du fluide ne dépend pas de la valeur de débit initialement introduit. Néanmoins, le débit est fixé afin de donner une estimation de la perte de charge par frottement pour ce type de configurations. L'écart-type normalisé par le débit moyen et la résistance globale à l'écoulement sont aussi reportés sur le *Tableau B.1*.

Le bouchage d'un canal correspond à l'augmentation de sa résistance hydrodynamique. On rappelle que le facteur de bouchage f_b a été défini comme suit:

$$f_b = \frac{R_1(bloquée)}{R_1} \tag{B.1}$$

Ce facteur varie en modifiant la résistance à l'écoulement correspondante au canal bouché.

Tableau B.1 *: Critères hydrodynamiques en fonction du taux de bouchage dans un seul canal (N°15) de la structure.*

f_b	*1*	*2*	*5*	*10*	*20*	*30*	*40*	*50*	*100*	*1000*
$R_{1\text{-}2}.10^{-7}$ [Pa.s/m^3]	2,05	2,07	2,08	2,08	2,08	2,08	2,08	2,08	2,08	2,08
σ	0,029	0,078	0,119	0,133	0,140	0,143	0,144	0,144	0,146	0,147

L'évolution de la maldistribution du fluide ainsi que de la perte de charge correspondante en fonction du facteur de bouchage dans un seul canal (canal N° 15) dans la structure est reportée sur la *Figure B.1*.

Il convient de préciser que le calcul de la maldistribution à partir du débit maximal et du débit minimal, obtenus à travers les canaux parallèles, ne tient pas compte du débit circulant dans le canal bouché. Le débit minimal considéré correspondra à celui circulant au centre de la structure.

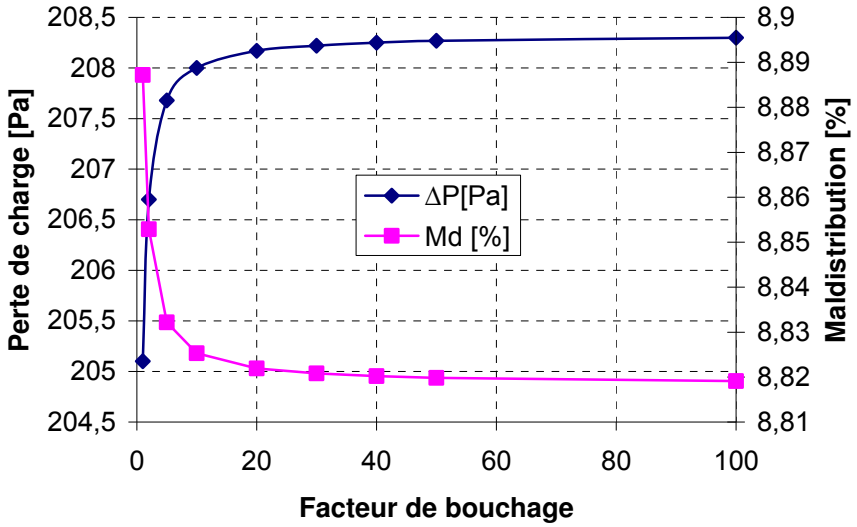


Figure B.1. *Evolution de la maldistribution et de la perte de charge globales en fonction f_b.*

On peut observer sur la *Figure B.1* que l'évolution des deux critères hydrodynamiques (*Md* et ΔP) est très rapide pour les premiers facteurs de bouchage ($f_b < 10$). Cependant, tandis que la perte de charge globale croit avec la résistance du canal bouché jusqu'à atteindre un palier, la maldistribution diminue inversement pour aussi atteindre un autre palier. Ces deux paliers sont atteints lorsque le bouchage est presque complet ($f_b > 100$) et qu'aucune circulation du fluide n'est possible à travers ce canal. Une nouvelle structuration géométrique est alors formée.

B.1.2. Position du bouchage

Les réponses hydrodynamiques dépendent aussi de la position de bouchage. On peut remarquer d'après le *Tableau B.2*, que le bouchage des canaux où les débits les plus élevés circulent, fait augmenter la maldistribution alors que le bouchage des canaux à faible circulation diminue la maldistribution.

Tableau B2 *: Critères hydrodynamiques en fonction de la position du bouchage pour un réseau à 50 canaux (R_1 = 8,15.108 Pa.s.m^{-1}, $r_{1.2}$ = 160).*

Position du bouchage	***0***	***5***	***10***	***15***	***20***	***30***	***35***	***40***	***45***
Md [%]	8,89	9,09	8,95	8,82	8,69	8,68	8,81	8,94	9,08
$R_{1\text{-}2}.10^{-7}$ [Pa.s/m^3]	2,05	2,09	2,08	2,08	2,08	2,08	2,08	2,08	2,09
σ	0,0295	0,1473	0,1473	0,1472	0,1472	0,1471	0,1472	0,1473	0,1473

Ceci est peut être lié au fait que les canaux à débit élevé se trouvent plus vers les extrémités de la structure, ce qui déstabilise plus la distribution du fluide, alors que les canaux à faible débit sont positionnés plus vers le centre (qui est commun aux deux extrémités).

B.1.3. Bouchage de plusieurs canaux à différentes positions

On simule ici l'encrassement d'un nombre progressif de canaux et ce à partir du canal *N°5* jusqu'au canal *N°50* sans boucher le canal au centre (il sert comme référence pour le calcul de la maldistribution). Le nombre de canaux bouchés est alors cumulé au fur et à mesure qu'on change de position comme le montre le *Tableau B.3*.

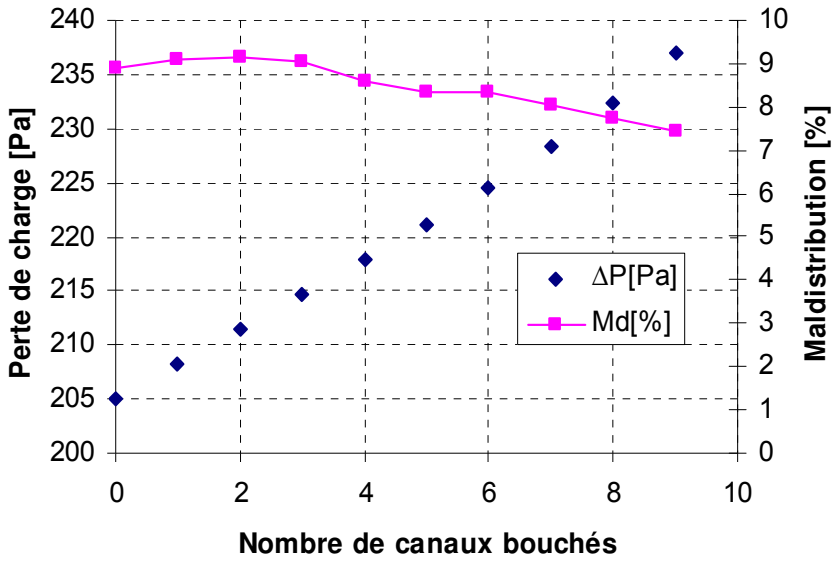


***Figure B.2**. Evolution de la maldistribution et de la perte de charge globale en fonction du nombre de canaux totalement bouchés.*

La *Figure B.2* illustre que l'évolution de la maldistribution en fonction du nombre de canaux bouchés n'est pas régulière. Une légère augmentation est notée pour les 3 premiers canaux bouchés alors qu'une diminution est constatée au fur et à mesure que le nombre de canaux bouchés augmente.

D'après les premiers résultats obtenus, il est possible d'attribuer ce changement de la maldistribution aux effets de la position et du nombre de canaux bouchés. En effet, les premiers cas de bouchage correspondent à un faible nombre de canaux bouchés situés dans les positions où les débits sont élevés, il est donc prévisible que la maldistribution augmente. Cependant, en avançant dans la structure, non seulement on tend vers les débits faibles au milieu de la structure mais aussi on augmente le nombre de canaux bouchés.

Ces deux effets font diminuer la maldistribution. Enfin, lorsque le nombre de canaux bouchés devient très important, la maldistribution diminue bien que dans les nouveaux canaux

bouchés, les débits les plus élevés sont présents. C'est l'effet de nombre de canaux bouchés qui emporte sur la tendance de la maldistribution.

Tableau B.3. *Critères hydrodynamiques en fonction du nombre de canaux bouchés*

Positions des canaux bouchés	***0***	***5***	***10***	***15***	***20***	***30***	***35***	***40***	***45***	***50***
Nombre de canaux bouchés	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9
$R_{1\text{-}2}.10^{-7}$	2,05	2,08	2,11	2,15	2,18	2,21	2,25	2,28	2,32	2,37
σ	0,029	0,1324	0,1867	0,2298	0,2672	0,3012	0,3327	0,3623	0,3905	0,4174

A contrario, la perte de charge globale augmente en augmentant le nombre de canaux bouchés. Ce résultat qui peut être expliqué à l'aide de la *Figure II.8* (résistance globale en fonction du nombre de canaux parallèles) reste valable lorsque le nombre total de canaux demeure inférieur au nombre donnant le minimum de résistance. Dans le cas contraire, le sens de déviation de la résistance globale risque d'être différent. Cependant, dans ce cas de figure la majeure partie de la résistance est due aux conduites de distribution et aux conduites de collecte tandis que l'effet du nombre de canaux parallèles sera moins important.

On peut voir aussi sur la *Figure B.3* que la symétrie de la distribution du fluide est légèrement modifiée à cause de bouchage. Le fait de boucher un canal dans le réseau correspond à la création d'une nouvelle structure à deux échelles. Cette nouvelle structure se rapproche de la structure initiale avec un canal en moins. Mais, si on examine de prêt la distribution des débits, on voit que la symétrie est légèrement perdue pour cette nouvelle structure. Ce nouveau comportement est lié au fait qu'en plus du bouchage de la structure dans les microcanaux, les portions des chambres de distribution et de collecte correspondant aux canaux bouchés subissent aussi des modifications du point de vue de leur résistance à l'écoulement, ce qui agit directement sur la symétrie de la distribution.

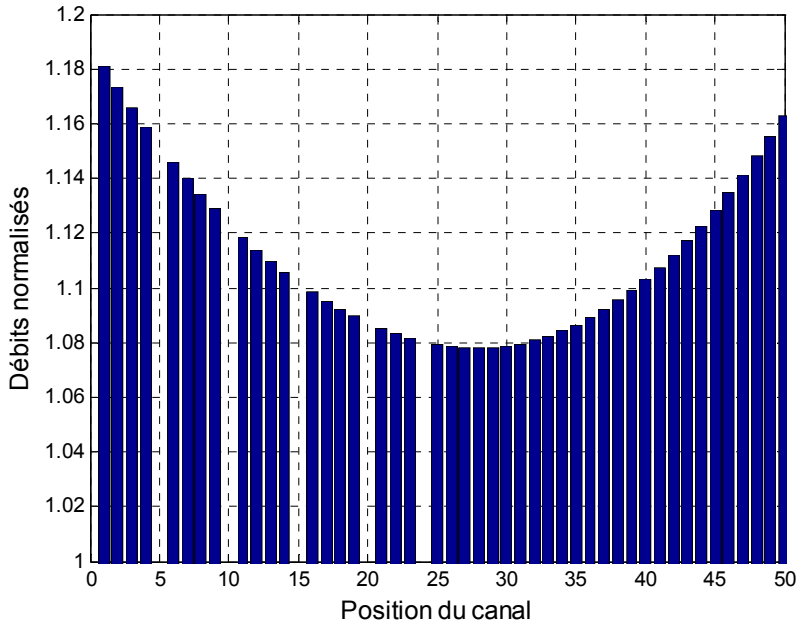


***Figure B.3**. Exemple d'une distribution du fluide en présence de 5 canaux bouchés à différentes positions.*

B.2. Robustesse des structures multi-échelles

B.2.1. Distribution du fluide en présence du bouchage

La robustesse des structures multi-échelle est aussi analysée à travers la simulation de l'encrassement total de canaux à différentes positions, dans une structure à quatre échelles présentant les caractéristiques géométriques reportées sur le *Tableau B4*.

***Tableau B4** : Contraintes géométriques de la configuration à quatre échelles (m=4).*

n_i (i= 1,m)	3	3	3	1
R_i (i= 1,m)	$2{,}04.10^9$	$5{,}10.10^6$	$8{,}30.10^6$	$1{,}80.10^5$

La notation $q_i(j,p)$ correspond au débit circulant dans le i^{eme} canal bouché dans la configuration élémentaire correspondante à la ligne *N° j* et la colonne *N° p* dans la matrice des réseaux élémentaires représentative de la structure à quatre échelle (*FigureB.5)*. Par exemple le débit noté $q_2(2,2)$ correspond au deuxième microcanal du réseau élémentaire, situé à la deuxième ligne et la deuxième colonne du réseau global.

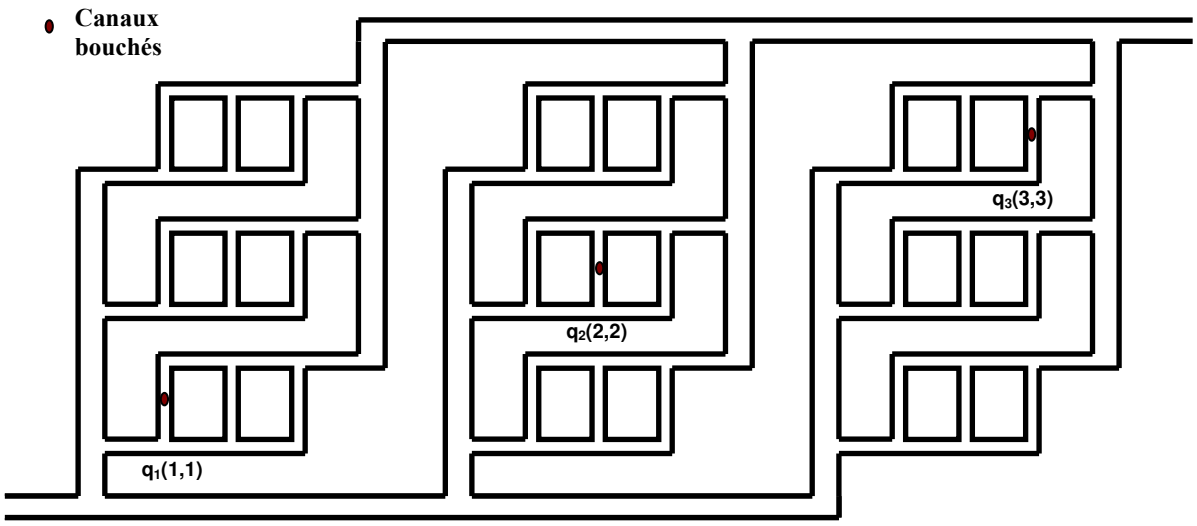


***Figure B4**. Exemple d'un réseau à quatre échelles [3,3,3] avec trois canaux bouchés à différentes positions.*

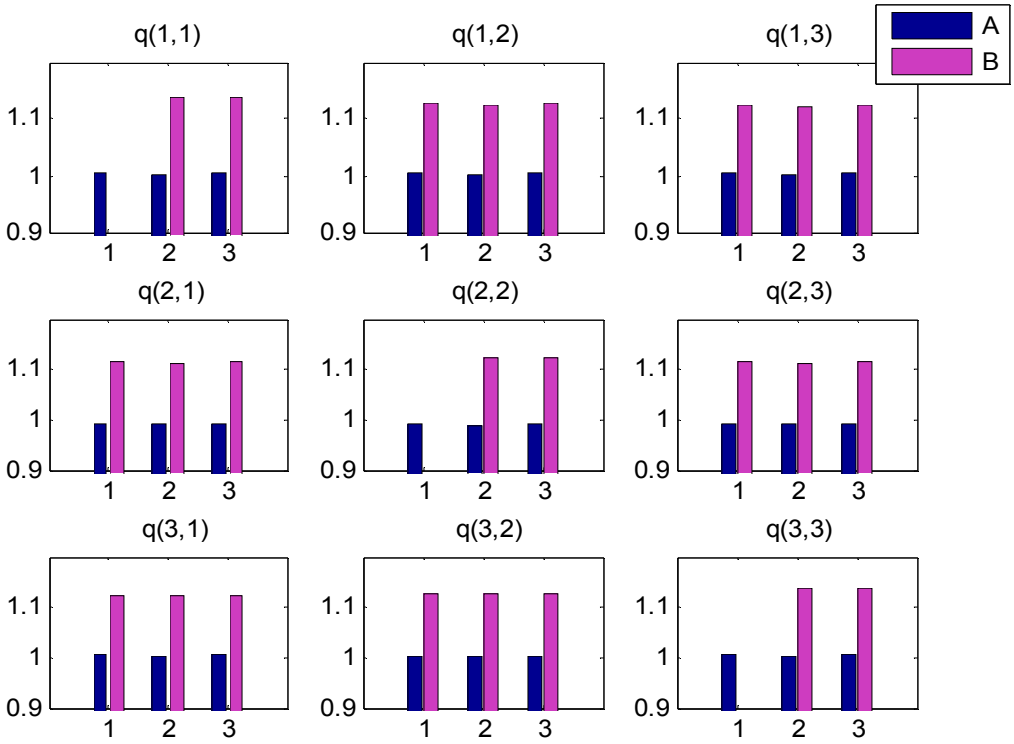


***Figure B5**. Distribution du fluide sur une structure à quatre échelles avec (cas A) et sans (cas B) présence de canaux bouchés.*

La *Figure B.5* illustre la distribution du fluide sur une structure à quatre échelles en présence de trois canaux bouchés ainsi que les différents écarts résultants sur les débits dans les microcanaux.

B.2.2. Influence du nombre et de la position des canaux bouchés

Le *Tableau B.5* regroupe les valeurs des critères hydrodynamiques en présence de différents nombres de canaux bouchés à différentes positions.

Tableau B5 *: Critères hydrodynamiques résultants après bouchage d'un nombre de canaux à différentes positions dans la configuration à quatre échelles [3,3,3].*

Position et nombre de canaux bouchés	***Sans bouchage***	$q_1(1,1)$	$q_1(1,1)$ $q_1(2,2)$	$q_1(1,1)$ $q_1(2,2)$ $q_1(3,3)$	$q_2(2.1)$	$q_1(2.2)$	$q_2(1,2)$
$R_{1.4}.10^{-7}$	8,593	8,890	9,199	9,539	8,881	8,882	8,888
$\Delta R_{1.4}$ [%]	0,00	3,45	7,05	11,01	3,35	3,36	3,43
σ normalisé	0,006	0,198	0,285	0,356	0,198	0,198	0,198
Md	1,495	3,383	8,836	12,085	2,515	0,319	2,510

L'augmentation de la résistance hydrodynamique globale est représentée par $\Delta R_{1\text{-}2}$ et est définie comme suit :

$$\Delta R_{1.4} = 100 \frac{R_{1.4}(bouchage) - R_{1.4}}{R_{1.4}} \tag{B.2}$$

Il est ainsi montré encore une fois, que selon le nombre et la position des canaux bouchés, la maldistribution et la résistance à l'écoulement évoluent différemment par rapport au cas d'une structure sans bouchage. Néanmoins, dans tout les cas étudiés, il ressort que la maldistribution du fluide n'est pas fortement modifiée en présence de canaux bouchés, notamment lorsque ce dernier reste faible par rapport au nombre total dans la structure.

La perte de charge est la grandeur globale qui peut être le plus facilement mesurée dans ce type de structure. La déviation de cette grandeur hydrodynamique peut être une indication sur l'existence d'anomalies à l'intérieur de la structure. Il n'est cependant pas possible de localiser la position d'objets bouchés pour un éventuel remplacement ou nettoyage.

Des mesures de distribution interne sont alors indispensables pour compléter le diagnostic d'un bouchage. Ces mesures sont très complexes à mettre en ouvre (notamment lorsque des mesures optiques sont impossibles) et nécessitent d'importants moyens lorsqu'il s'agit des applications industrielles. C'est la raison pour laquelle les équipements microstructurés doivent être conçus de manière à faciliter leur démantèlement pour accéder aux zones d'anomalies.

INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE
DE LORRAINE

AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :
Madame Katja HAAS SANTO, Directeur Scientifique, IMVT, Germany

Madame Agnès MONTILLET, Maître de Conférences, GEPEA, CRTT, Saint-Nazaire

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Madame SABER Meryem

NANCY BRABOIS
2, AVENUE DE LA
FORET-DE-HAYE
BOITE POSTALE 3
54501
VANDŒUVRE CEDEX

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE, une thèse intitulée :

"Conception et caractérisation d'échangeurs-réacteurs à structuration multi-échelle"

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 03 septembre 2009
Le Président de l'I.N.P.L.,
F. LAURENT

INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE - NANCY

TEL. 33/03.83.59.59.59
FAX. 33/03.83.59.59.55

Résumé

La présente thèse s'intéresse à la conception et la caractérisation des procédés microstructurés mettant en œuvre des réseaux de microcanaux de différentes dimensions. L'analyse de tels réseaux multi-échelles, représentatifs d'une parallélisastion de microsystèmes élémentaires, a essentiellement servi à identifier les principaux paramètres géométriques et physiques contrôlant les performances de ces réseaux complexes. On a cherché à quantifier l'influence des paramètres géométriques comme le rapport de résistances hydrodynamiques internes, le nombre de canaux et d'échelles opérant ainsi que leur répartition sur le réseau, sur des critères hydrodynamiques comme la maldistribution du fluide et la perte de charge résistive. Il est révélé qu'en fonction des contraintes imposées, un arrangement optimal des canaux sur un nombre pair d'échelles permet de réduire considérablement la maldistribution interne des flux et les pertes de charge résultantes.

L'analyse thermique associée à l'analyse hydrodynamique a montré que les performances thermiques des réseaux sont fortement liées à leurs structurations géométriques internes. En présence de réactions catalytiques consécutives, ces mêmes réseaux enregistrent des déviations du rendement du produit désiré. Ces déviations peuvent être levées par une structuration appropriée du réseau catalytique multi-canal. La même architecture de ces réseaux peut être adaptée pour permettre le déroulement des opérations de mélange et/ou des réactions multi-phasiques. Ainsi, pour ces réseaux complexes, où un nombre élevé de variables imbriquées est considéré, des lignes directrices sont ressorties pour aider à leur conception et dimensionnement.

Mots clés : Réseaux de microcanaux, *Numbering-up*, Maldistribution, Perte de charge, Efficacité.

Abstract

This PhD thesis focuses on the design and the characterization of microstructured processes including microchannel networks of various dimensions. The analysis of such multi-scale networks, representative of elementary microsystems parallelization, is mainly used to identify the main geometrical and physical parameters controlling the network performances. Influence of geometrical parameters, such as the internal hydrodynamic resistances ratio, the number of channels and scales and their arrangement in the network, on hydrodynamic criteria like fluid maldistribution and pressure drop is investigated. It is shown that according to some specific constraints, an optimal arrangement of the channels on an even number of scales, allows to reduce significantly the internal flow maldistribution and the consequential pressure losses.

The thermal analysis coupled with the hydrodynamic analysis illustrates that the thermal performances of microchannel networks are strongly affected by their internal geometrical arrangement. Nevertheless, the various mixture points located in the network compensate the fluid maldistribution resulting from a non appropriate geometrical arrangement. When consecutive catalytic reactions are performed inside these networks, deviations of the desired product rate can be recorded. These deviations can be reduced by an optimal catalytic network arrangement. The same architecture of these networks is also adapted to allow multi-phase mixing and /or reactions. Thus, using these complex networks, where several variables are considered, guidelines are derived in order to improve their design and their dimensionless.

Keywords: Microchannel networks, Numbering-up, Maldistribution, Pressure drop, Efficiency.