

Modélisation d'un procédé de congélation assistée par micro-ondes

Mathieu SADOT¹, Sébastien CURET¹, Olivier ROUAUD¹, Alain LE BAIL¹, Michel HAVET^{1*}

¹ LUNAM Université, Université de Nantes, CNRS, GEPEA, UMR 6144, ONIRIS
Rue de la Géraudière - CS 82225 - 44322 NANTES CEDEX 3

*(auteur correspondant : michel.havet@oniris-nantes.fr)

Résumé – Pour étudier l'impact thermique d'un champ électrique induit par des micro-ondes lors d'un procédé de congélation, nous avons développé un modèle numérique couplant l'équation de la chaleur aux équations de Maxwell. Le modèle a d'abord été validé à partir de données de la littérature, puis exploité pour mettre en évidence le rôle de la durée des pulses sur la répartition du champ électrique dans le produit et le réchauffement local au niveau du front de changement d'état. Ces simulations permettent de définir les paramètres pertinents pour de futurs essais expérimentaux.

Nomenclature

E	champ électrique local $V.m^{-1}$	ε''	facteur de perte diélectrique relatif
h	enthalpie spécifique $J.kg^{-1}$	ρ	masse volumique $kg.m^{-3}$
k	conductivité thermique $W.m^{-1}.K^{-1}$	ω	Pulsation $rad.s^{-1}$
N	nombre de cristaux	<i>Indices</i>	
Q	terme source équation chaleur $W.m^{-3}$	c	congelé
r	rayon d'un cristal m	cc	congélant commençante
T	température K	d	décongelé
t	temps s	e	eau liquide
x	fraction massique	ec	eau congelable
V	Volume m^3	el	eau lié
Y_T	constante de x_g K	fin	final
<i>Symboles grecs</i>		g	glace
ε_0	permittivité du vide $F.m^{-1}$	ms	matière sèche
ε'	constante diélectrique relative	t	total

1. Introduction

La qualité d'une congélation est déterminée par la taille des cristaux dans le produit. Elle est réduite lorsque de gros cristaux de glace se forment et endommagent les membranes cellulaires [1]. Elle est généralement meilleure pour une congélation rapide obtenue par des procédés coûteux. Cependant quelques études expérimentales indiquent qu'il serait possible d'obtenir des cristaux de plus petite taille par une congélation assistée par des ondes électromagnétiques [2, 3]. Ces travaux permettent d'envisager de nouvelles méthodes de congélation : soit moins énergivore à qualité de congélation égale (convection naturelle assistée par micro-ondes par exemple) soit rapide avec une qualité de congélation accrue (cryogénie assistée par micro-ondes). Cependant, les phénomènes sont encore mal compris et deux hypothèses sont actuellement envisagées. Le champ électrique alternatif induit par les micro-ondes provoque une rotation des molécules d'eau par alignement de leur dipôle électrique avec le champ électrique (2450 MHz). D'une part, ceci entraîne un échauffement par déformation des molécules d'eau et par leur frottement entre elles. D'autre part cette rotation interfère avec la formation du réseau de liaisons hydrogènes entre les molécules d'eau, ce qui est une des causes avancées de l'inhibition de la formation de glace [2]. L'autre hypothèse est que la fonte partielle des cristaux suite à l'élévation de température due aux pulses micro-ondes entrainerait des

cristaux de glace plus petits, et plus nombreux [3]. Dans le cadre du projet Européen FREEZEWAVE qui s'intéresse à ce procédé, l'objectif est de mieux comprendre les interactions lors de la congélation assistée par micro-ondes.

La congélation assistée par micro-ondes est un procédé complexe car la chaleur générée par les micro-ondes est liée à la fraction d'eau libre non congelée. En effet le champ électrique local et le facteur de perte diélectrique, responsables de la chaleur générée par les micro-ondes, sont directement liés à la fraction d'eau libre sous forme liquide. Comme l'indique le terme source (1) dans l'équation de la chaleur, plus le produit $\epsilon'' \cdot |E|^2$ est grand et plus la chaleur générée sera importante.

$$Q = \frac{1}{2} \omega \epsilon_0 \epsilon'' |E_{local}|^2 \quad (1)$$

Le facteur de perte varie avec la fraction d'eau qui se congèle car la glace a un facteur de perte plus faible que l'eau liquide. Les propriétés diélectriques des produits ayant une forte proportion d'eau sont donc également réduites avec l'augmentation de la fraction d'eau congelée, c'est le cas pour le gel de tylose utilisé dans cette étude. En dessous de la température de congélation commençante (-1.8°C), la diminution de la température engendre donc une diminution de la chaleur générée par les micro-ondes. De plus la répartition spatiale du champ électrique n'est pas homogène dans le produit, elle oscille entre ventres, où le champ électrique est fort, et nœuds où le champ électrique est faible. Les emplacements de ces ventres et de ces nœuds sont liés à la constante diélectrique du produit qui évolue avec la fraction d'eau congelée. Dans un matériau homogène de profondeur très importante par rapport à la longueur d'onde dans le milieu, le champ électrique subit une atténuation exponentielle en fonction de la profondeur du produit (Loi de Lambert). Si la profondeur du produit est du même ordre de grandeur que la longueur d'onde dans le produit, des résonances interviennent. Dans le cas d'un procédé de congélation, les propriétés diélectriques du produit diminuent localement au cours du temps (transformation de l'eau liquide en glace). L'onde électromagnétique devrait donc pénétrer plus profondément dans le produit et par conséquent l'atténuation du champ électrique devrait être moins importante. Pour mieux analyser et interpréter ces mécanismes complexes, nous développons un modèle numérique de congélation assistée par micro-ondes.

2. Modèle numérique

2.1. Paramètres du modèle

Le produit modèle est un gel de tylose (mélange de méthylcellulose avec de l'eau) d'épaisseur 30 mm remplissant la section d'un guide d'ondes rectangulaire en position verticale (section 86 x 43 mm pour le mode fondamental TE₁₀ à 2450 MHz). Les micro-ondes sont générées dès le début de la simulation par pulses périodiques à 2450 MHz pour des périodes de 30 s et pénètrent le produit par sa surface supérieure. Le procédé est simulé pour différentes durées de pulses (de 10% à 100% de la durée de la période) en gardant la même puissance moyenne de 20 W, soit 600 J par période (Figure 1).

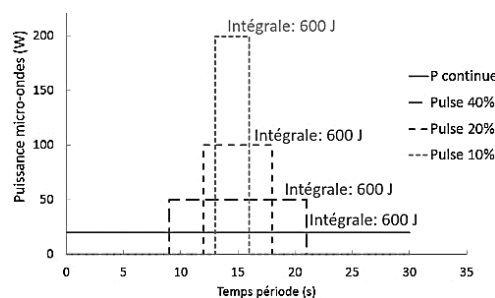


Figure 1 : Durée et puissance des pulses micro-ondes sur une période (30 s).

Au niveau des conditions aux limites, les parois du guide sont considérées comme conductrices parfaites d'électricité et comme étant adiabatiques. On néglige toute convection se produisant sur la surface inférieure de l'échantillon (isolation thermique). L'échantillon est refroidi par sa surface supérieure avec de l'azote gazeux (Figure 2) à -80°C et un coefficient de convection de $30 \text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ considéré homogène sur toute la surface (paramètres de l'étude [4]). La température initiale du produit est fixée à 5°C .

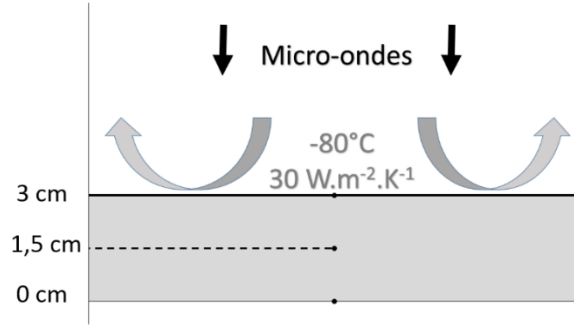


Figure 2: Schéma du système.

2.2.Modèle

L'équation de la chaleur (2) est résolue par une équation aux dérivées partielles basée sur la variation de l'enthalpie intégrant la chaleur latente de solidification de l'eau.

$$\frac{\partial T}{\partial t} \frac{\partial h}{\partial T} \cdot \rho - \nabla \cdot k \nabla T = Q \quad (2)$$

Pour le changement d'état, l'approche enthalpique a été choisie car elle a l'avantage de provoquer de moins grandes discontinuités par rapport à la méthode de la capacité calorifique apparente. Pour cette résolution on considère le C_p constant dans les phases congelée et décongelée.

L'équation de la chaleur comporte également le terme source Q qui correspond à la génération de la chaleur par micro-ondes. Ici la loi de Lambert ne peut pas être utilisée car les propriétés diélectriques évoluent localement au cours de la congélation et l'épaisseur du produit n'est pas suffisamment grande devant la longueur d'onde dans le produit. La chaleur générée est donc calculée à partir du champ électrique induit par les micro-ondes (Equation 1). Le champ électrique local E est obtenu par résolution des équations de Maxwell.

La congélation du produit est modélisée suivant la variation de la fraction de glace x_g , c'est-à-dire la fraction d'eau libre congelée explicitée en fonction du rayon des cristaux de glace :

$$x_g = \frac{m_g}{m_t} = \frac{4\pi}{3} \cdot r(T)^3 \cdot N \cdot \rho_g \cdot \frac{(\frac{x_{ms}}{\rho_{ms}} + \frac{x_{ec} + x_{el}}{\rho_e})}{V_t} \quad (3)$$

$$N = \frac{V_g}{V_{cristal}} = \frac{V_t}{(\frac{x_{ms}}{\rho_{ms}} + \frac{x_{ec} + x_{el}}{\rho_e}) \cdot \rho_g} \cdot x_{ec} \cdot \frac{3}{4\pi \cdot r_{fin}^3} \quad (4)$$

Les cristaux de glace sont considérés sphériques et de même rayon final. Leur croissance suit l'évolution de la température selon l'équation (5).

$$r(T) = \left(1 + \frac{Y_T}{T - T_{cc} - Y_T}\right) \cdot r_{fin} \quad (5)$$

Le rayon final des cristaux r_{fin} est fixé à $25 \mu\text{m}$ suivant l'ordre de grandeurs trouvé dans la littérature [2, 3]. Le paramètre Y_T est obtenu empiriquement grâce aux données de l'étude [4].

Les propriétés diélectriques et thermophysiques qui évoluent entre les propriétés du produit décongelé et du produit congelé sont modélisées suivant la variation de la fraction de glace x_g . Cette approche est similaire à celle basée sur la fraction volumique (moins de 2% d'écart pour la conductivité thermique par exemple).

$$\varepsilon' = \varepsilon'_d \cdot \frac{x_e}{x_{ec}} + \varepsilon'_c \cdot \frac{x_g}{x_{ec}} \quad (6)$$

$$\varepsilon'' = \varepsilon''_d \cdot \frac{x_e}{x_{ec}} + \varepsilon''_c \cdot \frac{x_g}{x_{ec}} \quad (7)$$

$$k = k_d \cdot \frac{x_e}{x_{ec}} + k_c \cdot \frac{x_g}{x_{ec}} \quad (8)$$

$$\rho = \frac{1}{\frac{x_{ms}}{\rho_{ms}} + \frac{(x_e + x_{el})}{\rho_e} + \frac{x_g}{\rho_g}} \quad (9)$$

Les propriétés du produit congelé et décongelé, sont répertoriées dans le Tableau 1. La masse volumique et les proportions des constituants sont présentées dans le Tableau 2.

		ε'	ε''	Cp	k
				J.kg ⁻¹ .K ⁻¹	W.m ⁻¹ .K ⁻¹
Produit	Congelé	6	1,5	2444,6	1,3
	Décongelé	59,2	16,8	3824	0,5

Tableau 1 : Propriétés thermophysiques et diélectriques du gel de tylose congelé et décongelé [5].

		Eau liée + (Eau libre)	(Eau libre gelée)	Matière Sèche
ρ	kg.m ⁻³	1000	917	1315
x	% base humide	0,14+(0,66)	(0,66)	0,2

Tableau 2 : Masse volumique et proportions des constituants du gel de tylose.

On admet que le volume ne varie pas avec la variation de la masse volumique en supposant une légère augmentation de la pression dont on néglige l'effet sur les phénomènes de transfert.

Ce modèle multiphysique est résolu en 2D sur le logiciel de simulation par éléments finis COMSOL Multiphysics 5.2. Le pas de temps maximum de résolution est de 0,1 s avec un échantillonnage toutes les secondes pour obtenir une précision suffisante relative à la faible durée des pulses micro-ondes. Une légère sensibilité au maillage de la température en surface durant les premières secondes de simulation a été observée. La taille des mailles quadrangles a été réduite de 50% jusqu'à obtenir un écart quadratique moyen inférieur à 5%. Pour la taille de maille satisfaisante (1,75 mm), le temps de calcul varie de 30 h à 72 h selon les configurations. Les simulations sont effectuées sur une station disposant de 256 Go de mémoire RAM et équipée d'un processeur Intel® Xeon® CPU E5-2680 v3 de 12 cœurs pour une cadence d'horloge de 2,50 GHz.

3. Résultats

3.1. Validation du modèle à partir de données de la littérature

Une première étape de validation a été effectuée à partir de travaux précédents. Le modèle thermique seul a été validé à partir d'un modèle 1D fonctionnant avec un Cp apparent, lui-même validé expérimentalement [4]. Il s'agit d'une congélation cryogénique avec de l'azote gazeux à -80 °C et un coefficient de convection de 30 W.m⁻².K⁻¹ sur un produit de longueur L de 2 cm jusqu'à atteindre -20°C en surface. Les cinétiques thermiques, non présentées ici,

coïncident parfaitement et valident notre approche enthalpique. Le modèle a ensuite été transposé en 2D en négligeant les effets de bords. La modélisation de l'effet des micro-ondes a été validé à partir des données d'une décongélation micro-ondes d'un produit à une température initiale de -22°C [5]. La Figure 3 montre ainsi les hétérogénéités spatiales de température dans le produit après 14 secondes de chauffage micro-ondes à 2450 MHz et à une puissance de 500 W. Nos résultats étant en excellent accord avec ceux de la littérature, que ce soit pour la congélation cryogénique ou pour le chauffage micro-ondes, le modèle a été exploité pour étudier le problème couplé de congélation cryogénique assistée par micro-ondes.

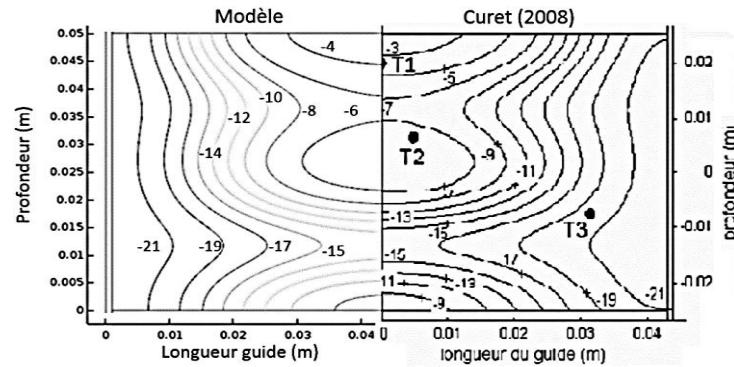


Figure 3 : Répartition de la température dans un gel de tylose en fonction de la longueur et de la profondeur après 14s de décongélation (Présent modèle et [5]).

3.2. Congélation assistée par micro-ondes

Les micro-ondes atteignent le produit par la face supérieure soumise au flux d'azote gazeux (Figure 2). Le front de congélation se propage donc dans le même sens que les micro-ondes. Avec l'avancée du front de congélation et l'atténuation des propriétés diélectriques la propagation des micro-ondes est moins atténuée. De ce fait les « points chauds » générés par les micro-ondes se déplacent avec le front de congélation, ce qui permet l'interaction des ondes électromagnétiques pendant le changement de phase (Figure 4 - Figure 5). La Figure 5 montre que la chaleur générée sur le front de congélation est un maximum local.

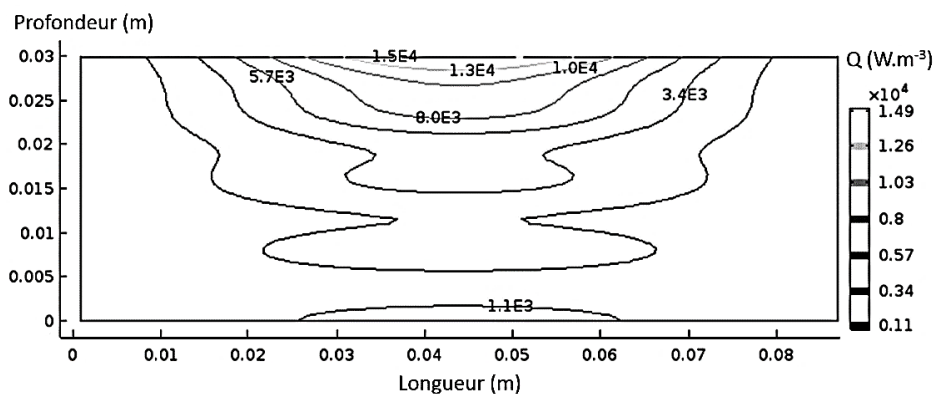


Figure 4 : Répartition de la chaleur générée par les micro-ondes en continu en fonction de la profondeur pour un produit entièrement décongelé ($t = 1$ s).

Les températures ont été tracées pour 3 points situés sur l'axe central à trois profondeurs (0 cm ; 1,5 cm et 3 cm) pour différentes durées de pulses : continu, 10%, 20% et 40% de la période de 30 s (Figure 6 - Figure 10). Les allures des courbes de température sont identiques pour différentes durées de pulses micro-ondes, elles apparaissent superposées sur la Figure 6 car à cette échelle, la résolution ne permet pas d'apprécier les oscillations dues aux pulses micro-ondes.

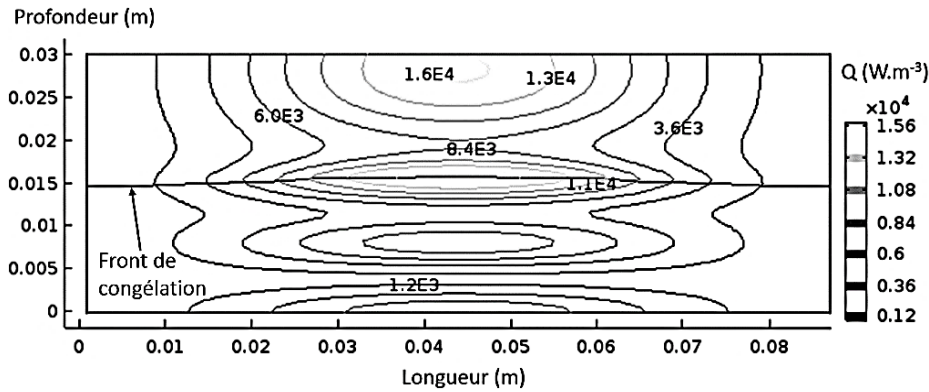


Figure 5 : Répartition de la chaleur générée par les micro-ondes en continu en fonction de la profondeur après 30 min de congélation cryogénique assistée par micro-ondes.

Ce résultat est cohérent car la puissance moyenne délivrée est identique, il y a donc la même quantité d'énergie transmise au produit (Figure 1). Pour observer les différences entre ces courbes, notamment des oscillations de température dues aux pulses micro-ondes, il faut zoomer sur une petite portion de courbe (Figure 6 - Figure 10). Les oscillations sont de relativement faible amplitude et les écarts de température (ΔT), en comparaison des courbes de températures pour lesquelles les micro-ondes ont été générées sans pulses, n'excèdent pas $0,1^\circ\text{C}$. On note que ΔT est plus grand pour des durées de pulses plus faibles ce qui s'explique par le fait que la même quantité d'énergie est fournie sur une durée plus courte. En observant les oscillations sur un intervalle de température resserré autour de la température de congélation commençante on met en évidence la nette atténuation des ΔT une fois le changement d'état initié (Figure 8 - Figure 10). Ceci met en exergue l'influence du changement d'état de l'eau sur les propriétés diélectriques du produit. La diminution du facteur de perte diélectrique explique la diminution de la chaleur générée localement par les micro-ondes.

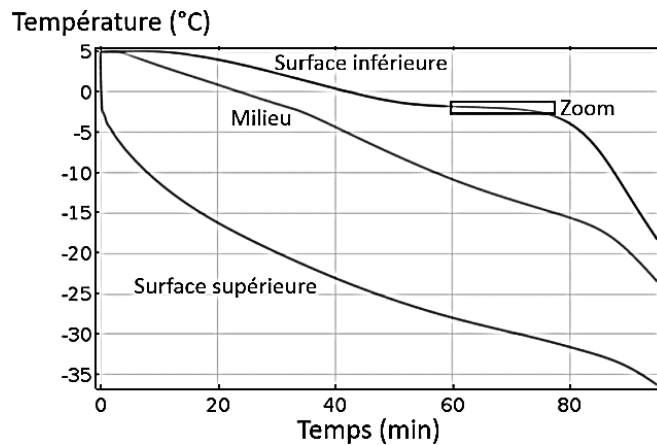


Figure 6 : Evolution de température en surfaces supérieure (3 cm), milieu (1,5 cm) et inférieure (0 cm) pour des micro-ondes en continu et pulsées à 10%, 20% et 40% de la durée de la période.

La répartition du champ électrique n'est pas homogène dans le produit (Figure 11). Dans notre cas, l'épaisseur du produit est du même ordre de grandeur que la longueur d'onde dans le milieu : trop petite pour obtenir une décroissance exponentielle, trop grande pour obtenir un régime résonant. Les ondes sont atténuées tout en présentant des résonances, il s'agit d'un régime hybride [6]. On peut alors observer des nœuds pour lesquels le champ électrique est minimal, et des ventres pour lesquels il est maximal. Ces ventres, quand l'eau dans le produit est dans son état liquide, sont également les localisations des points chauds pour lesquels la génération de chaleur est maximale.

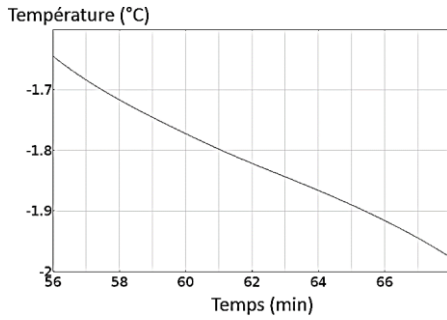


Figure 7 : Zoom sur l'évolution de température (à 0 cm) pour des micro-ondes en continu.

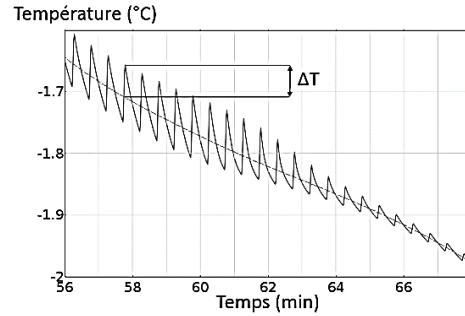


Figure 8 : Zoom sur l'évolution de température (à 0 cm) pour des micro-ondes pulsées (10% de la période).

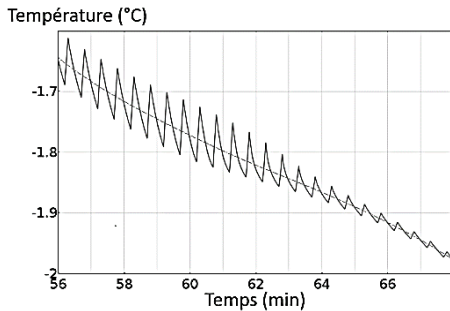


Figure 9 : Zoom sur l'évolution de température (à 0 cm) pour des micro-ondes pulsées (20% de la période).

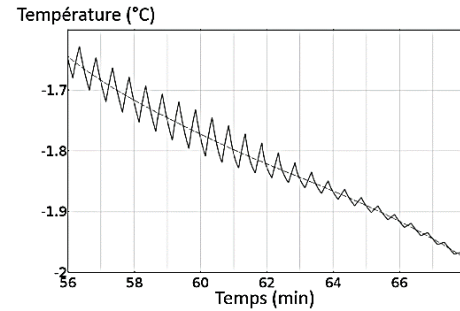


Figure 10 : Zoom sur l'évolution de température (à 0 cm) pour des micro-ondes pulsées (40% de la période).

Dans un procédé sans changement d'état, l'emplacement des points chauds ne varie pas puisque les propriétés diélectriques sont considérées constantes. En revanche, lors de la congélation assistée par micro-ondes, la diminution des propriétés diélectriques due au changement d'état de l'eau entraîne un déplacement des points chauds. Sur les Figure 4 et Figure 5, qui représentent la répartition de la chaleur pour respectivement 1 s et 30 min de traitement, nous avons constaté une variation de la position des points chauds. Certains points chaud disparaissent en fin de simulation. La Figure 12 montre les emplacements du front de congélation et des points chauds sur l'axe central du produit (Figure 11), où la chaleur générée est maximale, en fonction du temps. Au début du procédé, un point chaud est situé en surface (0,03 m) et se déplace en suivant le front de congélation jusqu'à 30 min (Figure 12, point a). Pendant cette durée et jusqu'à une profondeur de 0,015 m, la position du front de congélation est concomitante avec ce point chaud. La Figure 12 permet également d'observer la rencontre de 2 points chauds à 0,019 m de hauteur après 20 min de traitement (point b). Enfin les apparitions et disparitions de plusieurs points chauds avec l'évolution des propriétés diélectriques au cours du temps de congélation sont aussi observées.

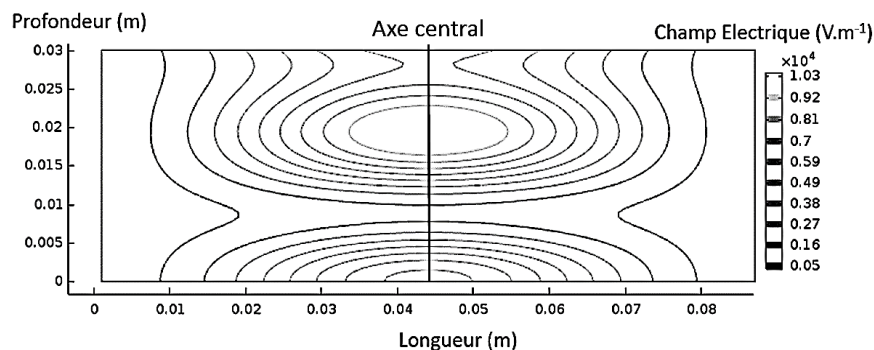


Figure 11 : Répartition du champ électrique dans un produit complètement congelé (après 2h).

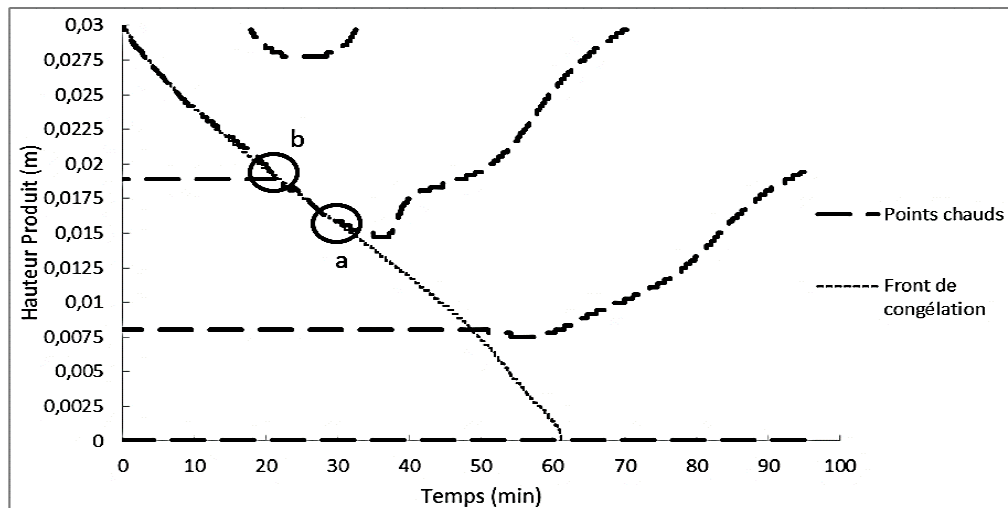


Figure 12 : Positions des points chauds et du front de congélation sur l'axe central du produit en fonction du temps

4. Conclusion

Un procédé innovant de congélation assistée par pulses micro-ondes a été modélisé en tenant compte de l'évolution des propriétés diélectriques suivant la congélation progressive de l'eau libre. Le modèle, basé sur une approche enthalpique avec terme source, a permis de mettre en évidence et quantifier les oscillations de température dues aux pulses micro-ondes pour différentes durées de pulses. Nous avons également pu observer le déplacement des points chauds avec l'évolution des propriétés diélectriques due au changement d'état. L'impact thermique des pulses micro-ondes étant désormais clairement identifiés, nous allons mettre en œuvre une campagne d'essais expérimentaux pour en apprécier l'effet sur la taille des cristaux et intégrer une cinétique de croissance des cristaux dans le modèle.

Références

- [1] A.E. Delgado, D. W. Sun, Heat and mass transfer models for predicting freezing processes – a review, *Journal of Food Engineering* 47 (2001), 157-174.
- [2] M. Anese, L. Manzocco, A. Panozzo, P. Beraldo, M. Foschia, M.C. Nicoli, Effect of radiofrequency assisted freezing on meat microstructure and quality, *Food Research International* 46 (2012), 50-54.
- [3] E. Xanthakis, A. Le-Bail, H. Ramaswamy, Development of an innovative microwave assisted food freezing process, *Innovative Food Science and Emerging Technologies* 26 (2014), 176–181
- [4] O. Rouaud, A. Le-Bail, R. De Pellegrin, Transfert de chaleur et de masse lors de la congélation de produits non emballés, *Revue générale du froid et du conditionnement de l'air* 1137 (2013), 42-47
- [5] S. Curet, Traitements micro-ondes et transferts de chaleur en milieu multiphasique, *Thèse de doctorat*, Université de Nantes, 2008
- [6] S. Curet, O. Rouaud, L. Boillereaux, Effect of sample size on microwave power absorption within dielectric materials : 2D numerical results vs. closed-form expressions, *AIChE J.* 55 (2009), 1569-1583

Remerciements

Les auteurs remercient l'Agence Nationale de la Recherche pour le financement du projet « FreezeWave » (FP7-ERA-Net SUSFOOD).