

Echangeur/réacteur à milli-canal ondulé : hydrodynamique et transferts dans un écoulement liquide/liquide

Antoinette MAARAWI, Zoé ANXIONNAZ-MINVIELLE, Pierre COSTE,
Nathalie DI MICELI RAIMONDI, Michel CABASSUD

Séminaire SFT – 26 janvier 2023 - Paris



Intensification des procédés

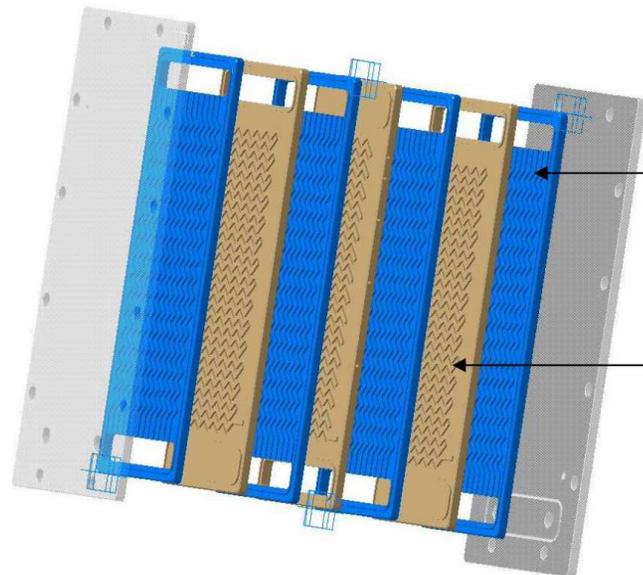
→ Couplage de plusieurs fonctions unitaires

Développement des échangeurs/réacteurs milli-structurés :

→ Intensification des transferts thermiques

→ Temps de séjour critique

→ Ecoulements de Dean (structuration 2D du canal réactionnel)



Plaque utilité → chauffage ou refroidissement

Plaque procédé → réaction

Intensification des procédés

→ Couplage de plusieurs fonctions unitaires

Développement des échangeurs/réacteurs milli-structurés :

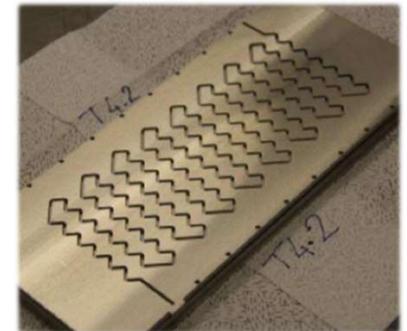
→ Intensification des transferts thermiques

→ Temps de séjour critique

→ Ecoulements de Dean (structuration 2D du canal réactionnel)

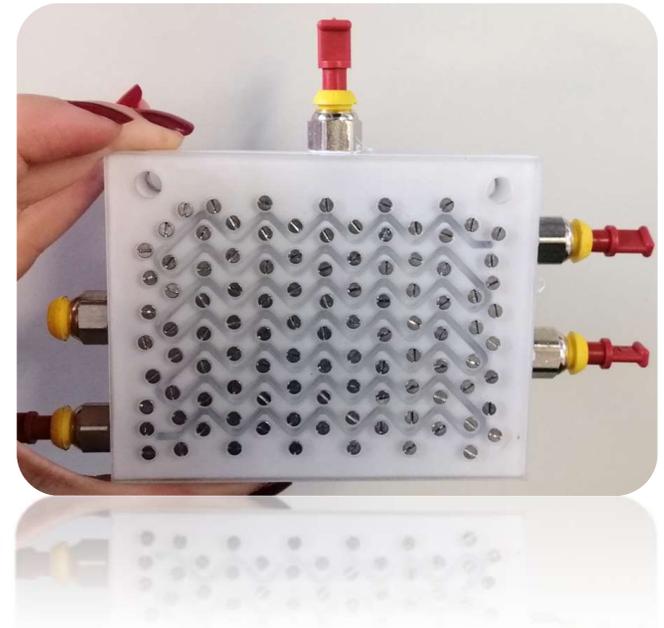
Polyvalence de ces technologies ?

Mise à l'échelle ?

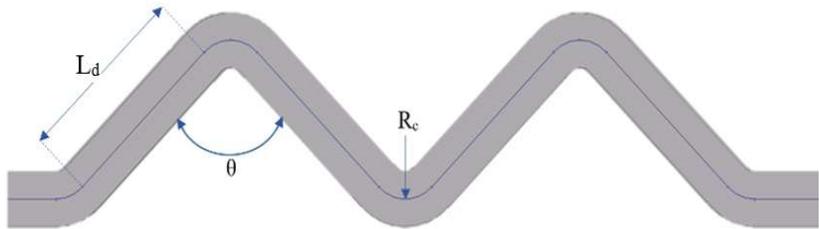
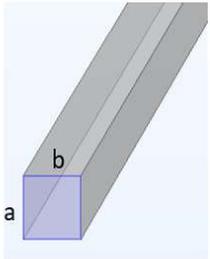


Modèle de prédiction des performances thermiques et massiques en milieu diphasique

- L'échangeur/réacteur milli-structuré
- Système diphasique
- Régimes d'écoulement et transfert massique
- Modélisation numérique (thermique + massique)
- Conclusions / Perspectives

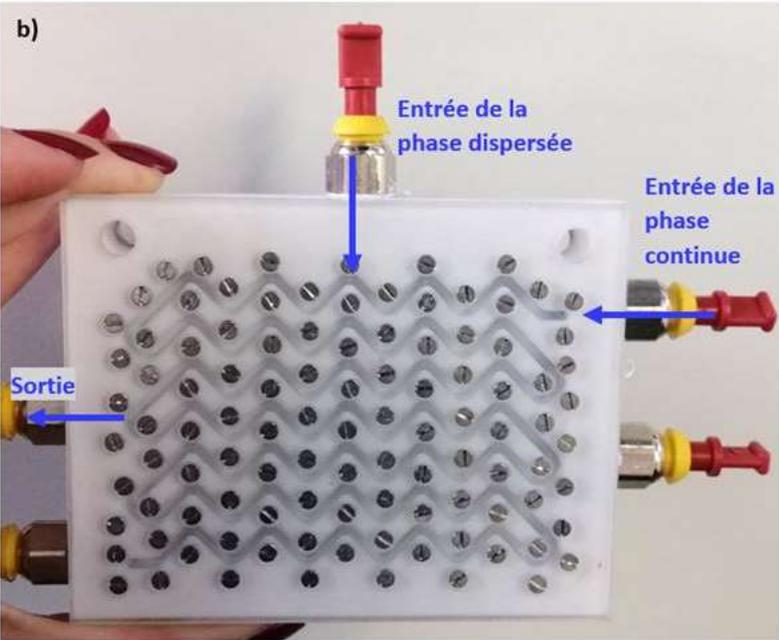


L'ÉCHANGEUR/RÉACTEUR MILLI-STRUCTURÉ



a=b (mm)	R _c (mm)
2	1,5
3	2,25
4	3

$L_d=7\text{mm} ; \theta=90^\circ$

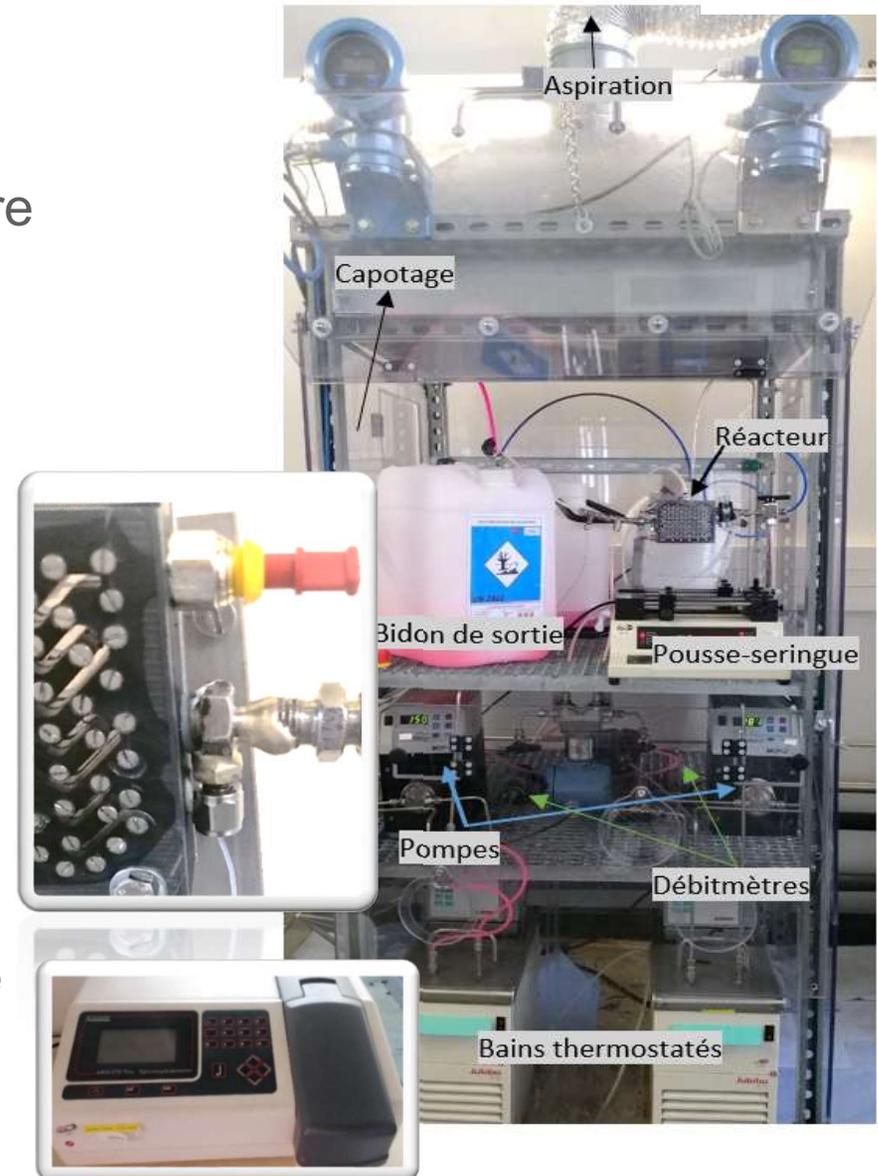


- Visualisation des écoulements
- Caractérisation du transfert de matière liquide/liquide

- Eau / Rhodamine B / Octan-1-ol

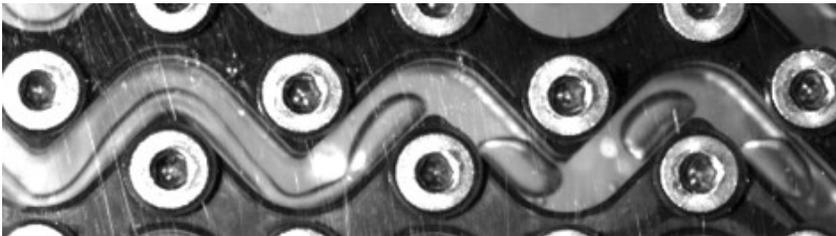


- Séparation en sortie de maquette
- Analyse spectrophotomètre UV-Visible

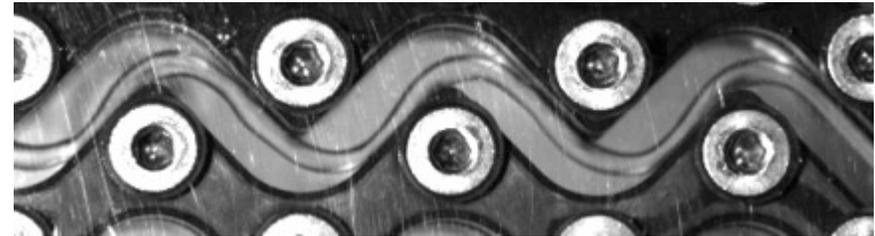


Quatre régimes d'écoulements observés:

1. Annulaire/Bouchons



2. Annulaire



3. Annulaire/Dispersé



4. Agité (émulsion)



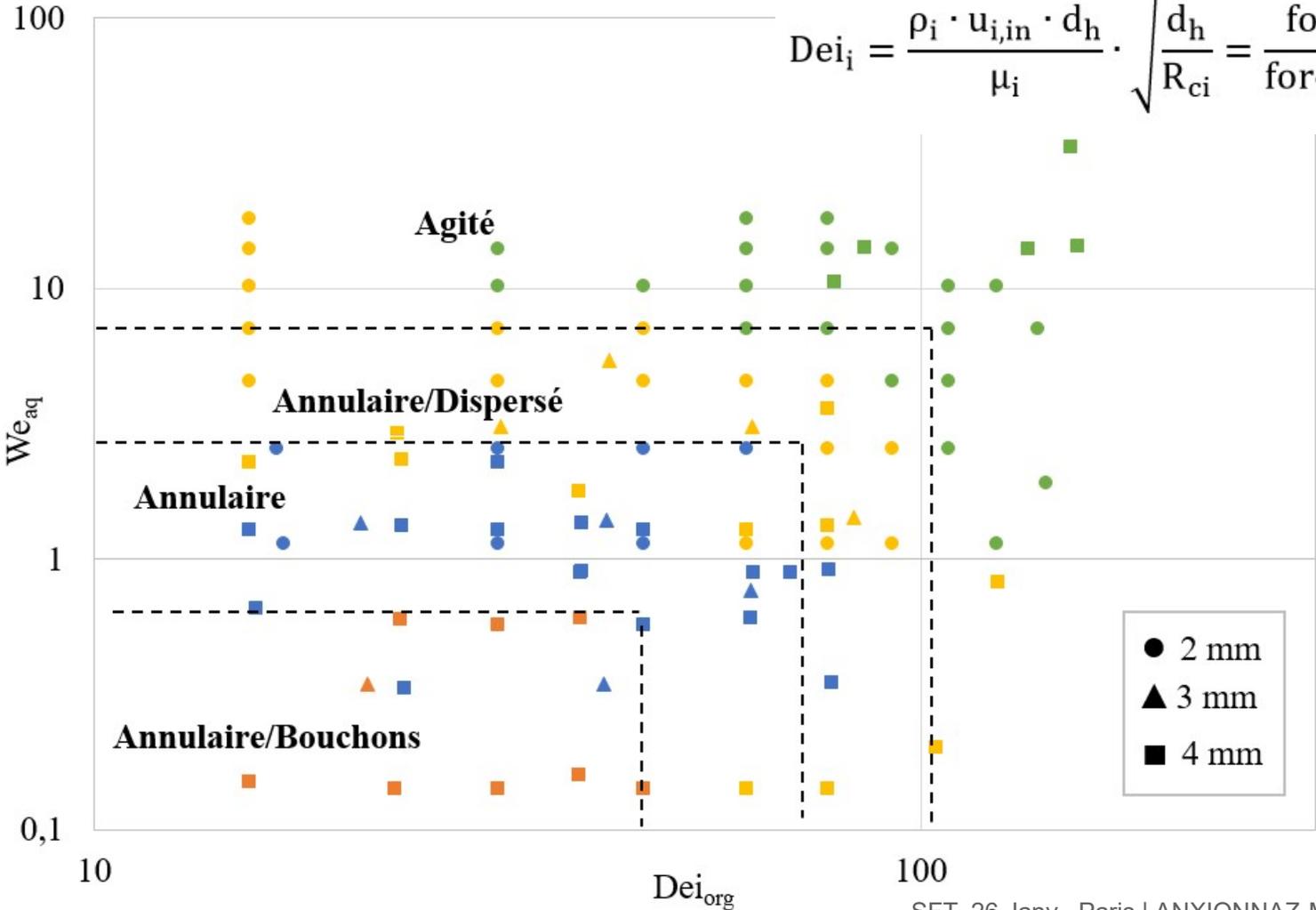
Phase organique = phase continue

CARTOGRAPHIE D'ÉCOULEMENT

✓ Satisfaisante
Quelle que soit la taille des milli-canaux !

$$We_i = \frac{\rho_i \cdot u_{i,in}^2 \cdot d_h}{\gamma} = \frac{\text{forces d'inertie}}{\text{tension interfaciale}}$$

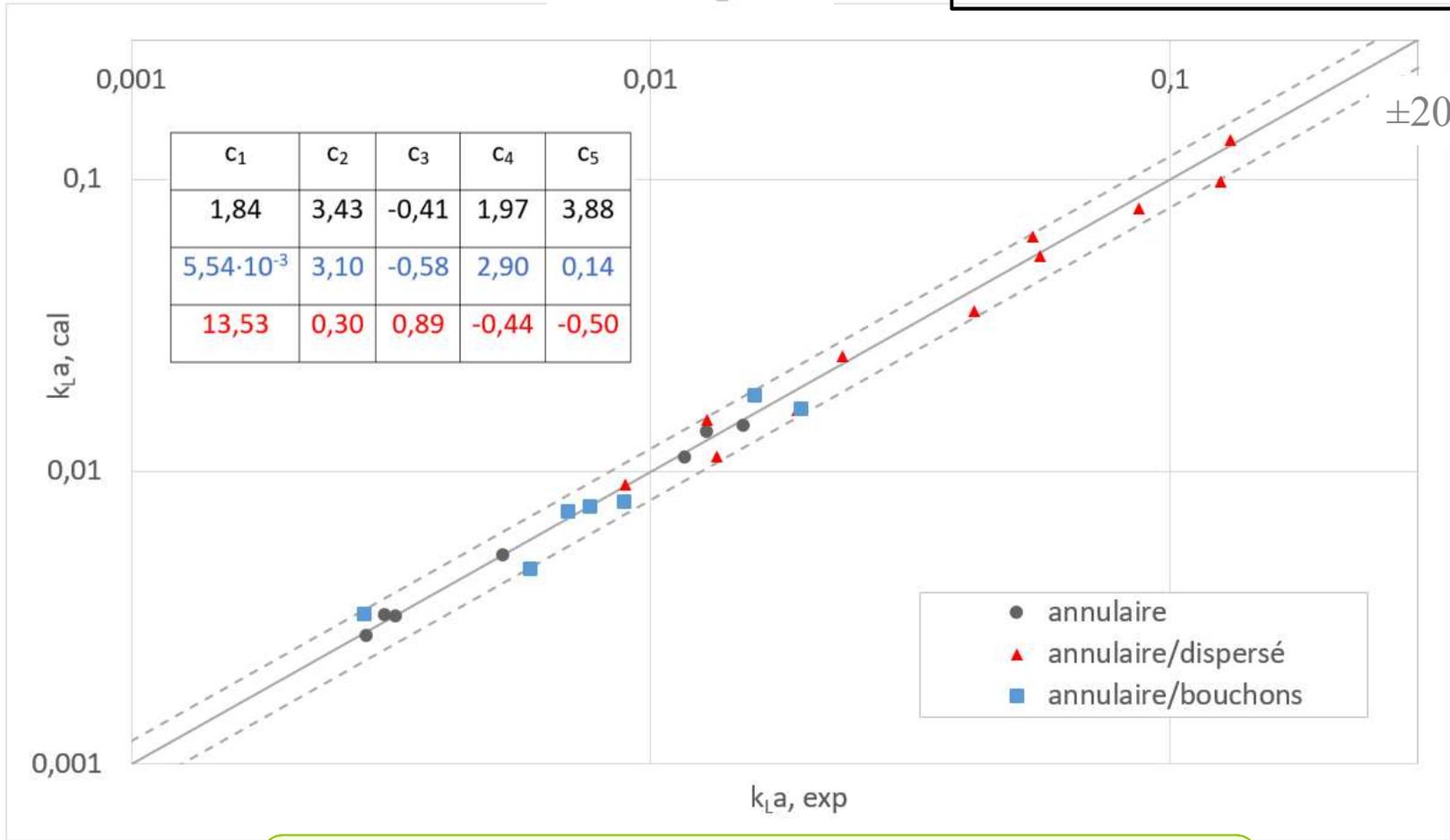
$$Dei_i = \frac{\rho_i \cdot u_{i,in} \cdot d_h}{\mu_i} \cdot \sqrt{\frac{d_h}{R_{ci}}} = \frac{\text{forces d'inertie}}{\text{forces visqueuses}}$$



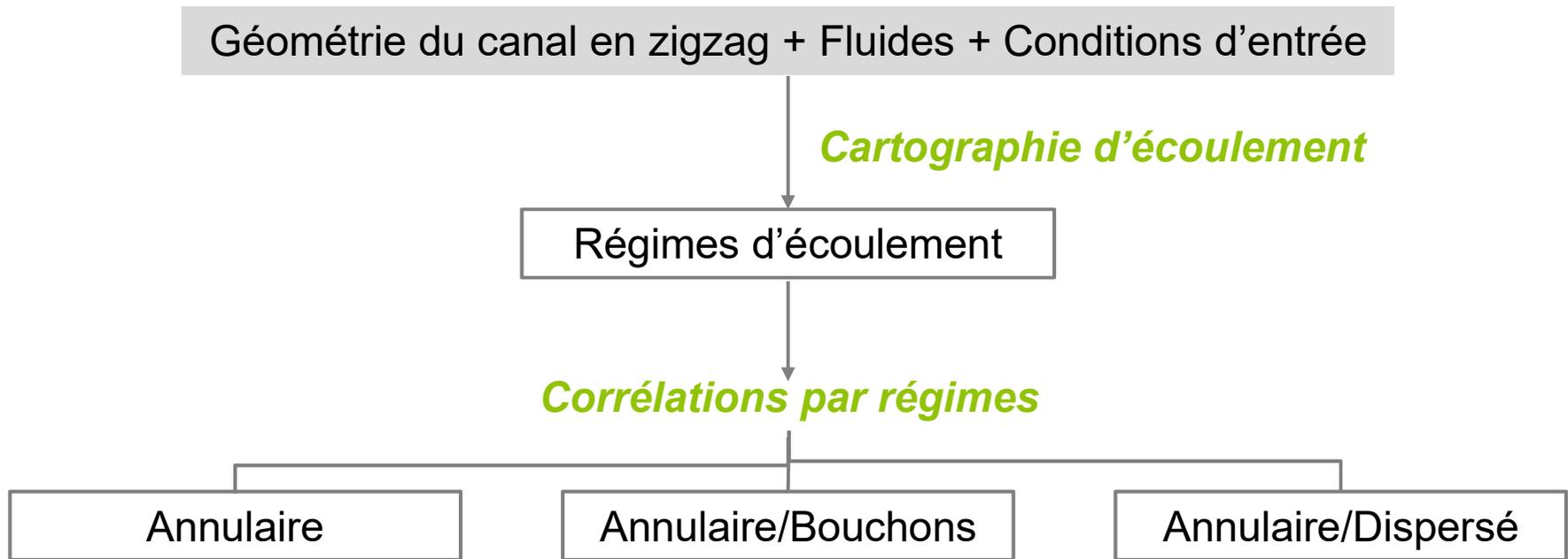
TRANSFERT DE MATIÈRE

$$Sh^* = \frac{k_{La} \cdot d_h^2}{D}$$

$$Sh^* = c_1 \cdot De_{org}^{c_2} \cdot We_{aq}^{c_3} \cdot q^{c_4} \cdot \left(\frac{R_{ci}}{L_d}\right)^{c_5}$$



- ✓ Même forme de corrélation *quel que soit le régime*
- ✓ Données de différentes tailles de canaux

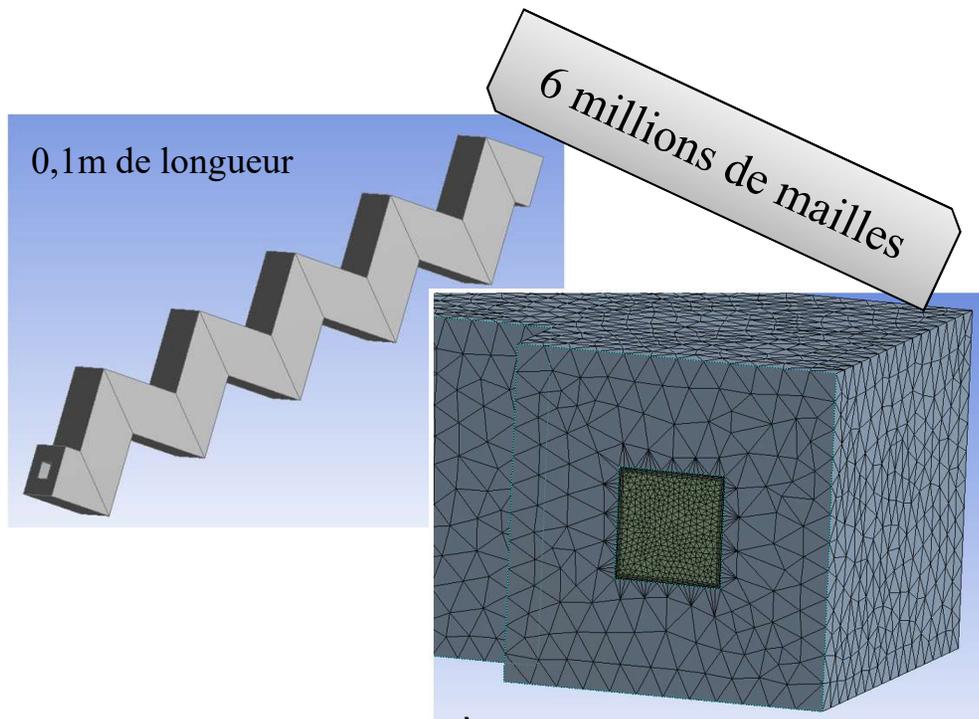


Modèle numérique pour prédire les performances du réacteur à des conditions opératoires données !

Modèle d'échangeurs/réacteurs à plaques pour:

- Simulation rapide de cas d'étude
- Prédiction des performances lors de la mise à l'échelle industrielle

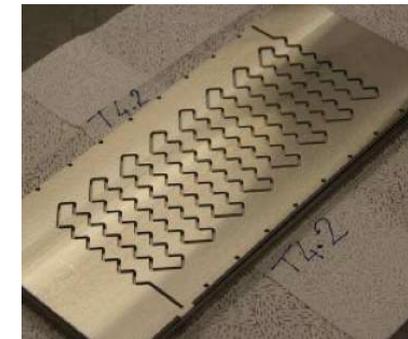
Modèles 3D CFD :



Modèles 1D :

↓
Flux de chaleur:

- ✓ entre fluides « procédé » et « utilité »
- ✗ entre canaux adjacents



Simulations longues et complexes (*géométries des canaux avec L/d_h élevé*)

Approche numérique **1D/3D**

Comsol

*Compromis entre
les modèles 1D
'classiques'
et 3D CFD*

Couplage :

- **modèle 1D** pour le canal zigzag
- **modèle 3D** pour le solide environnant

Modèle 1D:

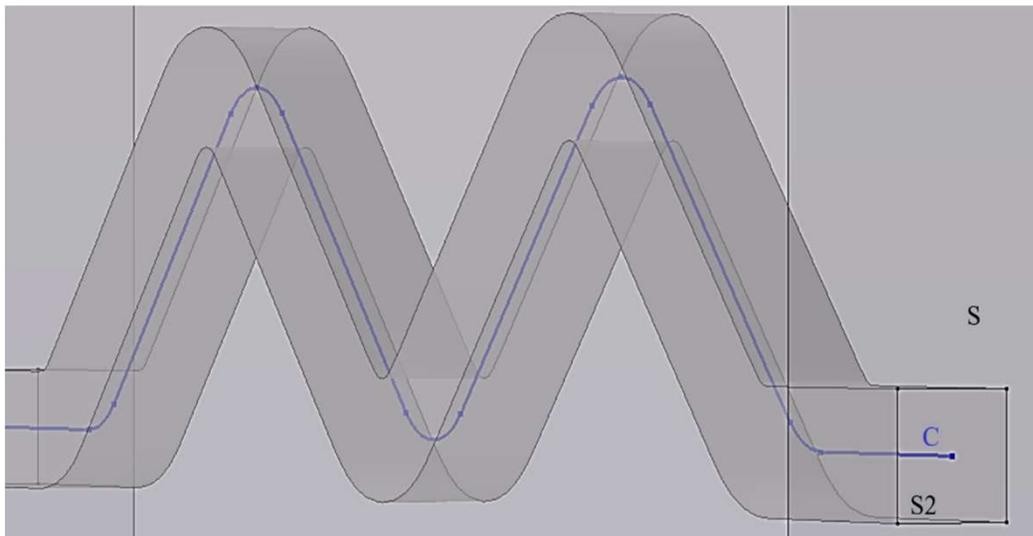
- Variables physiques **moyennées** sur les sections transversales du canal
 - ✓ *Éviter le maillage 3D complexe de la section du canal*
- **Corrélations** intégrées
 - ✓ *Prédire les performances de l'échangeur/réacteur*
 - ✓ *Transfert thermique + massique + pertes de charge*

Canal en zigzag 3D → Fil 1D « C » (axe du canal 3D)

Matériau solide du dispositif → Matrice solide « S »

+ **Solide fictif « S2 »**

- Géométrie du solide réel
- Conditions aux limites réalistes dans « S » (flux de chaleur)



Géométrie simulée avec l'approche 1D/3D.

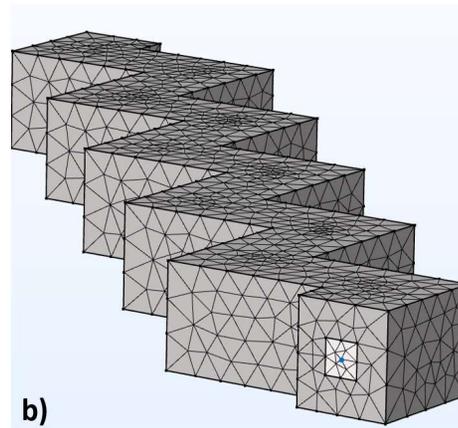
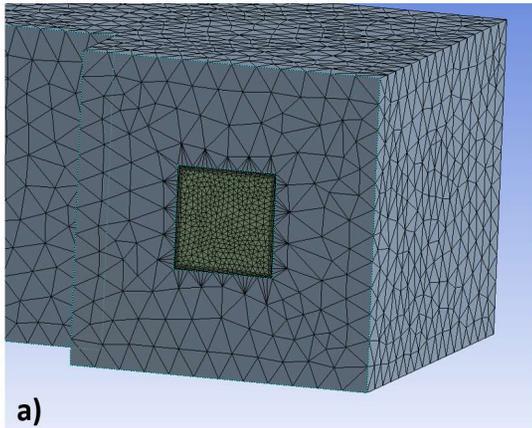
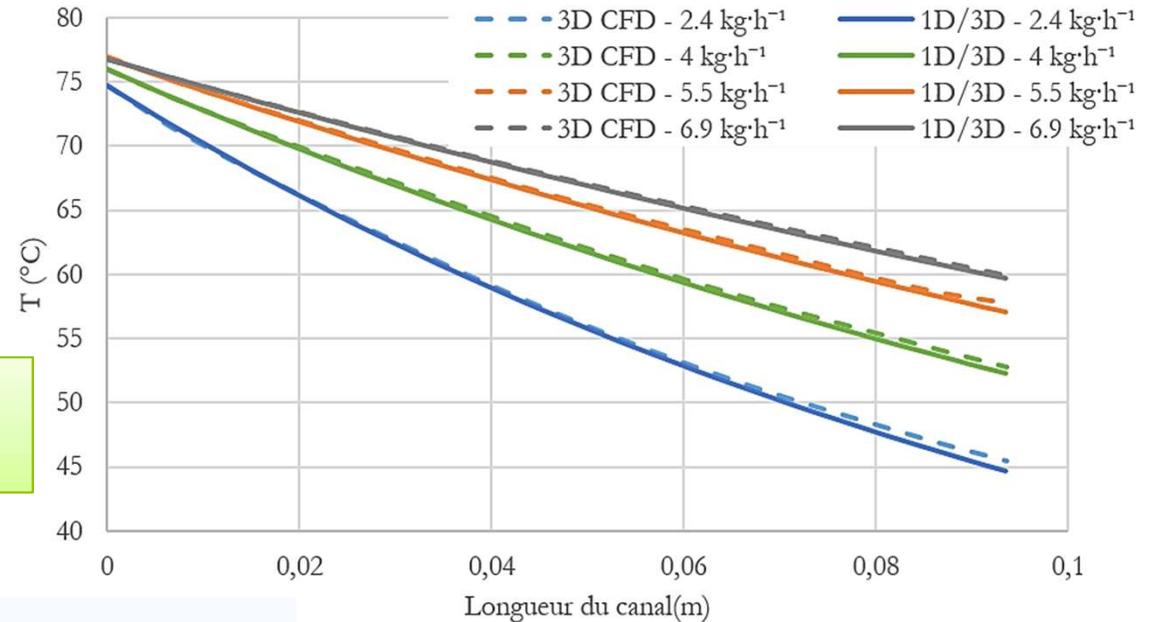
+ **Conductivité thermique de « S2 » radialement infinie ($10^5 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$)**

- Transmission de la température de « C » au voisinage des parois de « S2 » dans chaque section

Comparaison aux résultats CFD 3D

- ANSYS Fluent
- Modèle de turbulence SST k- ω
- Re de 700 à 2300

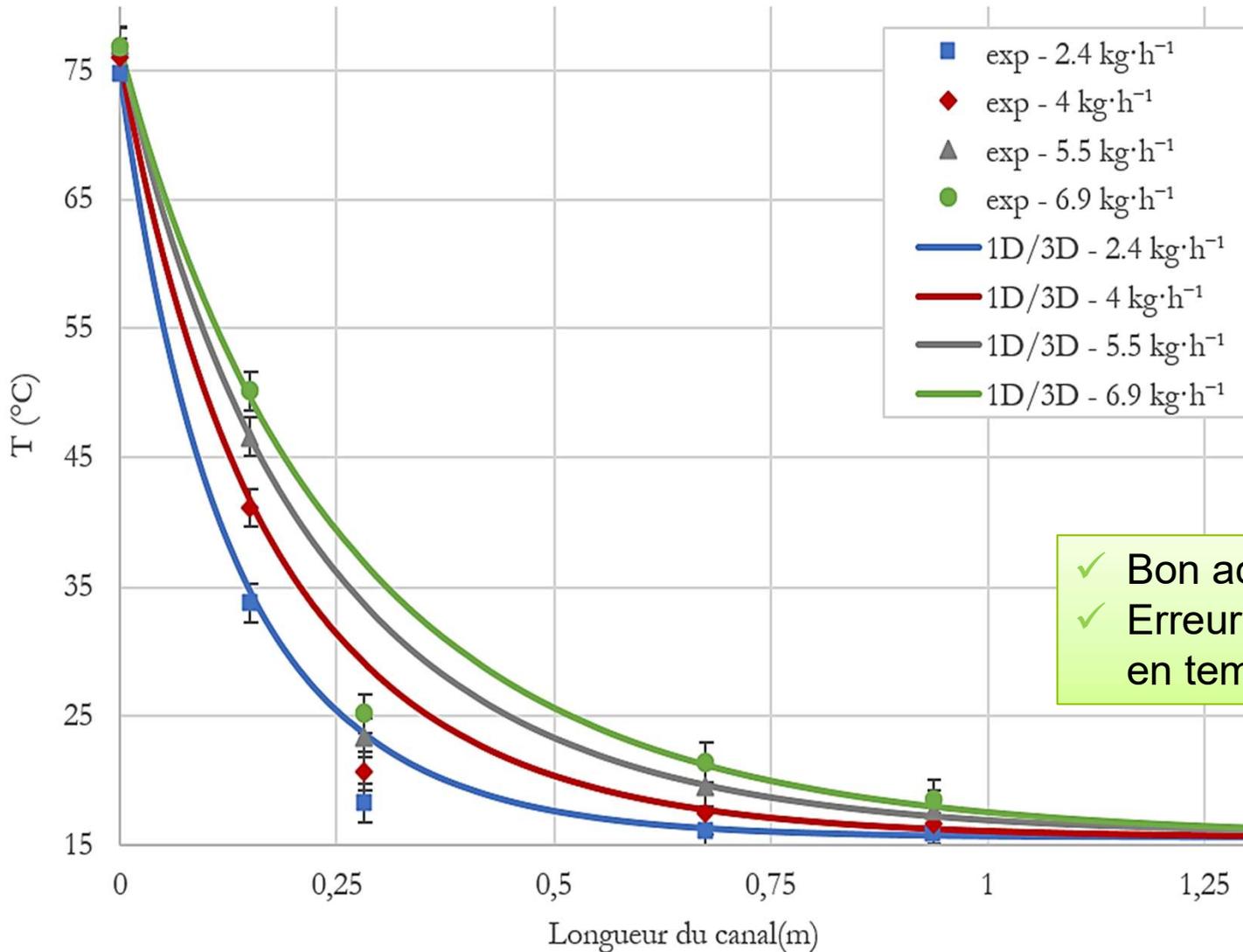
- ✓ Erreur relative maximale < 2%
- ✓ Très bon accord



Maillages utilisés dans les simulations a) CFD 3D et b) 1D/3D.

- ✓ 6 millions de mailles (3D CFD) vs 77 240 mailles (1D/3D)
- ✓ Réduction significative du temps de calcul (4h à 5min)

Comparaison aux résultats expérimentaux



✓ Bon accord
✓ Erreur relative maximale en température < 4%

Implémentation réaction exothermique : $2\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3 + 4\text{H}_2\text{O}_2 \rightarrow \text{Na}_2\text{S}_3\text{O}_6 + \text{Na}_2\text{SO}_4 + 4\text{H}_2\text{O}$

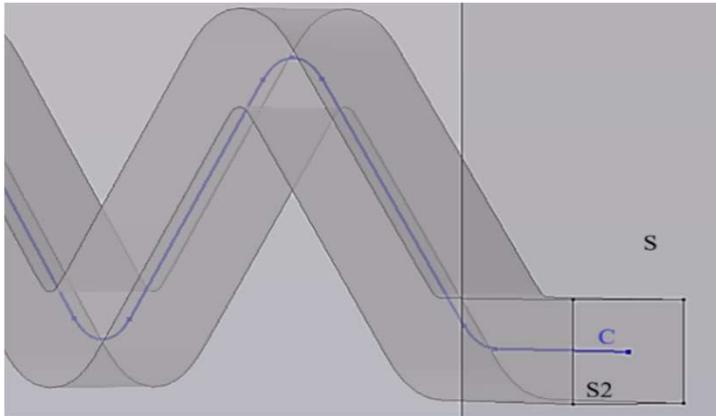
N° Exp.	$T_{p,out,exp}$ (°C)	$T_{p,out,simu}$ (°C)	Conversion (exp)		Conversion (simu)
			Reacteur	Dewar	
1	43,9	40,6	60	59	73
2	41,4	40,2	82	94	92
3	43,4	40,7	88	91	86
4	51,0	50,3	93	100	96
5	59,2	59,8	95	100	99

Différence relative en température < 8%

*Modèle 1D/3D validé
en monophasique
(avec et sans réaction)*

Différence relative en conversion (réacteur) < 12%
Différence relative en conversion (Dewar) < 5%

Modélisation diphasique



→ Où le fil « C » = canal procédé de section S_p



Appliquer à « C » **deux physiques 1D** (deux liquides) : (section $S_i = \alpha_i \cdot S_p$ avec $i=aq$ et org)

Flux transféré:

$$F = \frac{k_L a}{\alpha_{org}} \cdot (m \cdot c_{aq} - c_{org})$$

Dans le modèle:

- **Corrélations de $k_L a$** selon le régime d'écoulement
- Conditions opératoires des expériences
- Calcul des fractions volumiques d'après **modèle de glissement**

➔ Comparaison des concentrations en sortie du réacteur (simulées vs expérimentales)

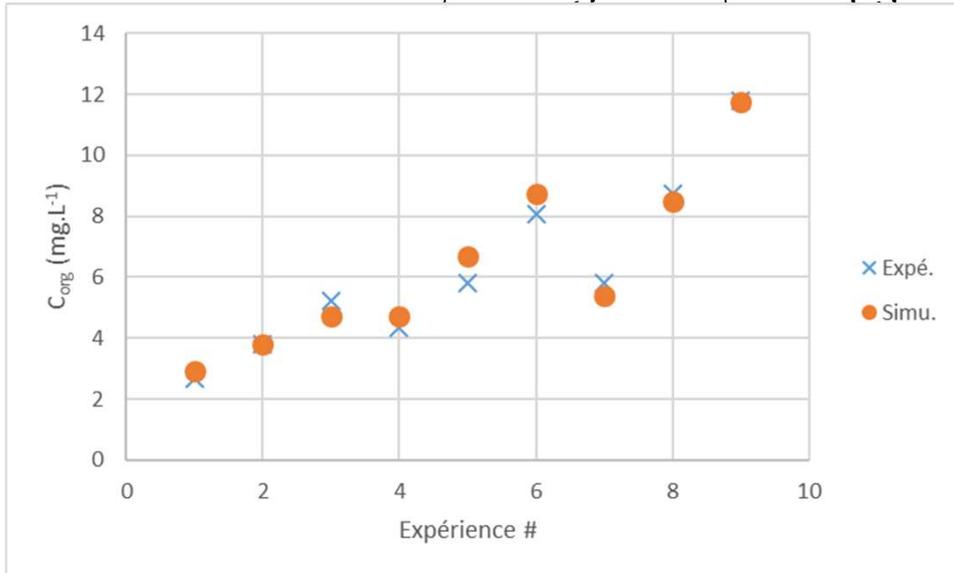
VALIDATION DU MODÈLE

$d_h = 2 \text{ mm}$

Erreur relative < 15%
(en moyenne < 7%)

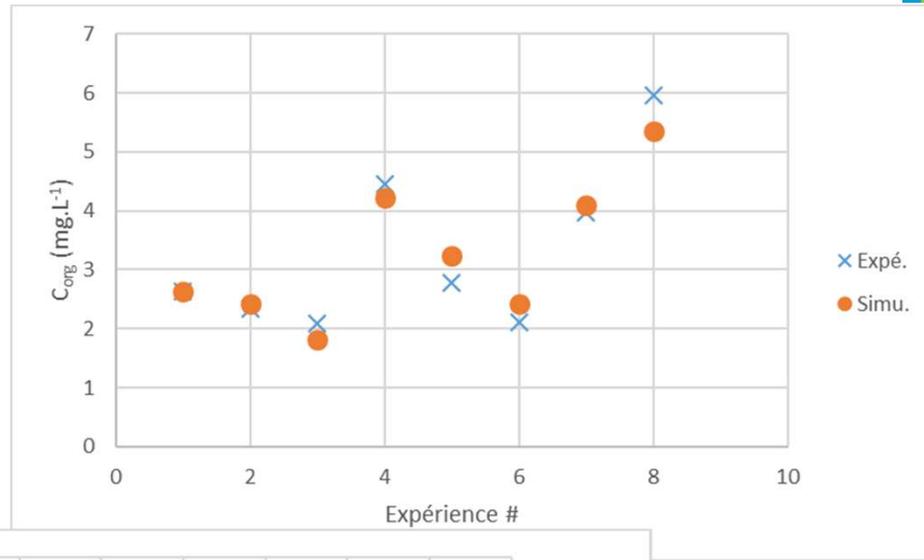
$Q_{aq} \text{ (kg} \cdot \text{h}^{-1}\text{)}$	$Q_{org} \text{ (kg} \cdot \text{h}^{-1}\text{)}$	$c_{org, exp} \text{ (mg} \cdot \text{L}^{-1}\text{)}$	$c_{org, simu} \text{ (mg} \cdot \text{L}^{-1}\text{)}$
1	2	2,67	2,91
1,5	3	3,78	3,81
2	4	5,23	4,7
1	1	4,36	4,72
2	2	5,82	6,69
3	3	8,06	8,75
1	0,5	5,80	5,37
2	1	8,73	8,48
3	1,5	11,79	11,75

$\pm 0,3 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$



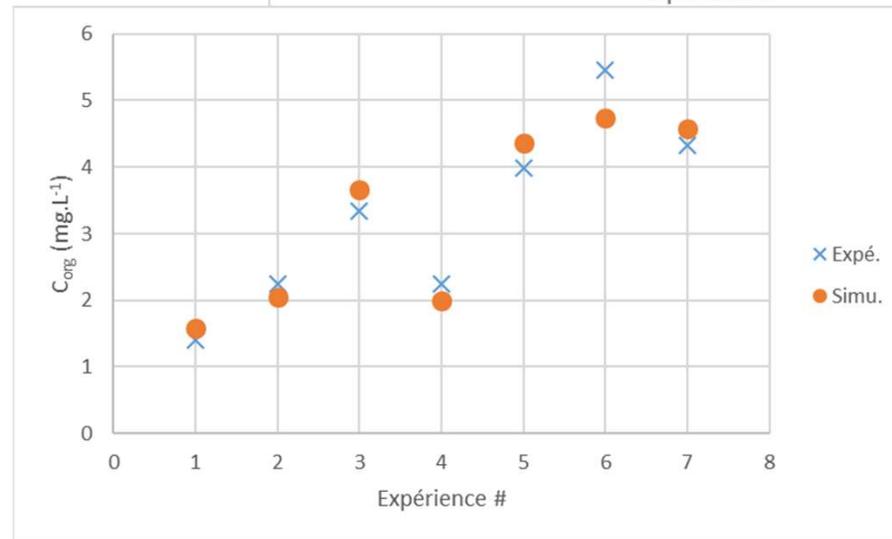
$d_h = 3 \text{ mm}$

Erreur relative < 17%
(en moyenne < 8%)



$d_h = 4 \text{ mm}$

Erreur relative < 13%
(en moyenne < 10%)



Résultats prometteurs : - corrélations de $k_L a$ résultant d'un ensemble de données
- différents régimes d'écoulement et tailles de canaux

- ❖ Caractérisations expérimentales d'un **échangeur/réacteur à milli-canal** ($d_h=2$; 3 et 4mm)
 - Cartographie d'écoulements
 - Transfert de matière liquide/liquide
 - Corrélations pour le transfert de matière

- ❖ Nouvelle approche de **modélisation 1D/3D**
 - Représentation fine des phénomènes avec moins de ressources
 - Transfert de chaleur avec et sans réaction (monophasique)
 - Temps de calcul de 4h (CFD 3D) à 5min
 - Lois de frottement, corrélations de transferts thermique et massique
 - Modèle validé à partir de résultats expérimentaux (diphasique)

- ❖ **Plusieurs systèmes de fluides** ayant différentes propriétés physico-chimiques
- ❖ Écoulement de type **agité**
- ❖ Modélisation (EES) du **glissement**
- ❖ **Canaux « utilité »** présents géométriquement et représentés par des modèles 1D
 - Modélisation dynamique
 - Evaluation des effets de déviation des conditions opératoires
- ❖ Simulation d'une **réaction diphasique**, rapide et exothermique avec le modèle 1D/3D
 - Validation du modèle complet (transferts thermique et massique)
 - Étude de l'effet du régime d'écoulement sur les taux de conversion



zoe.minvielle@cea.fr



MERCI POUR VOTRE ATTENTION

THANKS FOR YOUR ATTENTION

Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives
17 rue des Martyrs | 38054 Grenoble Cedex
www-liten.cea.fr

Établissement public à caractère industriel et commercial | RCS Paris B 775 685 019