UNIVERSITÉ DE NANTES
École polytechnique de l'Université de Nantes

École Doctorale SPIGA

Année : 2015

N° attribué par la bibliothèque

Étude expérimentale du fractionnement liquide-liquide en micro-canaux pour la production en continu de biodiesels émulsionnés.

THÈSE DE DOCTORAT

Discipline : Énergétique, thermique, combustion
Spécialité : Énergétique et Génie des procédés
Présentée et soutenue publiquement par :

Arab BELKADI

Le 03 mars 2015, devant le jury ci-dessous

Président : **M. Christophe DUMOUCHEL**, Directeur de recherche, Université de Rouen (CORIA)
Rapporteurs : **M. Michel GRADECK**, Professeur, Université de Lorraine (LEMTA)
M. Laurent PRAT, Professeur, Université de Toulouse (LGC-INP)
Examinateurs : **M. Patrizio MASSOLI**, Directeur de recherche, CNR Italie (Institut Motori Naples)
M. Yves LE GUER, Maître de conférences - H.D.R., Université de Pau (SIAME)
Directeur de thèse : **M. Jérome BELLETTRE**, Professeur, Université de Nantes (LTN)
Co-Directeur de thèse : **Mme. Agnès MONTILLET**, Professeur, Université de Nantes (GEPEA)
Co-encadrant de thèse : **M. Dominique TARLET**, Maitre de conférences, Université de Nantes (LTN)

ED : 498.

Remerciements

Il m'est très agréable de réserver cette page comme un modeste témoin de reconnaissance à toutes les personnes qui ont participé de loin et de prêt à la réalisation de ce travail.

Je tiens tout d'abord à exprimer mes sincères remerciements aux membres du jury, le président de jury, les rapporteurs et les examinateurs qui ont accepté d'évaluer mon travail.

Je ne remercierai jamais assez mon équipe d'encadrement, à savoir mon directeur de thèse le professeur Jérôme BELLETTRE, ma co-directrice le professeur Agnès MONTILLET et mon co-encadrant Dominique TARLET. Ces derniers, m'ont honoré de leur confiance en m'accordant la chance de mener ce projet de thèse. Ils m'ont également honoré de leur patience à toute épreuve. Je remercie chaleureusement le professeur Patrizio MASSOLI avec lequel nous avons collaboré sur une partie de ce travail et pour ses innombrables interventions.

Je tiens à remercier très chaleureusement le professeur Mohand TAZEROUT de l'école des Mines de Nantes, porteur du projet EDEDD et notre directrice du Laboratoire LTN Cathy CASTELAIN, sans lesquels tout cela ne se serait jamais concrétisé.

Dans la foulée, je remercie également très chaleureusement tous mes collègues du Laboratoire de Thermocinétique de Nantes et la formidable équipe Technique dont jouit ce laboratoire, en particulier Gwenaël BIOTTEAU, Jérôme DELMAS, Nicolas LEFEVRE, Christophe LE BOZEC, mais aussi Julien AUBRIL.

Table des matières

I Introduction **1**

Introduction **1**

II État de l'art bibliographique **8**

II.1 Introduction 8

II.2 Formation et physicochimie des émulsions 9

II.2.1 Mécanismes de déstabilisation des émulsions 11

II.2.2 Le rôle des émulsifiants 15

II.3 Caractéristiques des émulsions 18

II.3.1 La viscosité des émulsions 18

II.3.2 Caractérisation des émulsions (Granulométrie) 20

II.4 Mécanismes de fractionnement liquide-liquide 25

II.4.1 Les nombres adimensionnels 27

II.4.2 La surpression de Young-Laplace 29

II.4.3 Fractionnement de gouttes en régime laminaire 30

II.5 Les systèmes mécaniques de production d'émulsions 33

II.5.1 Dispersion liquide-liquide dans les micro-canaux 35

II.5.2 Les écoulements diphasiques dans les micro-canaux 36

II.5.3 Les jets en impact confinés 41

II.5.4 Vitesses d'écoulement et diamètres représentatifs de gouttes recensés . . . 42

II.6 Diffusion de la lumière par des gouttes 43

II.7 Conclusion 48

III Matériel et Méthodes expérimentales **49**

III.1 Introduction 49

III.2 Présentation du banc d'emulsification 50

III.2.1 Caractéristiques des fluides employés 50

III.2.2 Mesure de la tension inter-faciale . . . 52
III.2.3 Mesure du débit . . . 54
III.2.4 Mesure de la pression relative . . . 55
III.2.5 Mesure du diamètre des gouttes . . . 56
III.3 Mesures physiques non-intrusives . . . 59
III.3.1 Visualisation à haute fréquence . . . 59
III.3.2 Seconde technique d'investigation : mesure de la lumière collectée . . . 61
III.3.3 Banc d'essai optique . . . 64
III.3.4 Calibration de la technique d'extinction laser . . . 69
III.4 Conclusion . . . 74

IV Écoulements diphasiques à jets impactants - influence de la géométrie des canaux sur le fractionnement de l'émulsion eau dans huile 75

IV.1 Introduction . . . 76
IV.2 Étude du procédé d'émulsification à travers les micro-canaux en croix . . . 76
IV.3 Étude des écoulements diphasiques à travers le micro-système "600-600" . . . 79
IV.4 Diamètre hydraulique du canal d'eau réduit à 300 μm . . . 83
IV.4.1 Visualisations des écoulements dans le micro-système "300-600" . . . 85
IV.4.2 Visualisations des écoulements dans le micro-système "300-800" . . . 86
IV.5 Diamètre hydraulique du canal d'eau réduit à 200 μm . . . 87
IV.5.1 Visualisations des écoulements dans le micro-système "200-600" . . . 88
IV.5.2 Visualisations des écoulements dans le micro-système "200-800" . . . 89
IV.6 Comparaison des résultats d'émulsification des micro-canaux . . . 90
IV.6.1 Comparaison à l'aide du critère des pressions relatives . . . 90
IV.6.2 Comparaison sur la base du critère de la granulométrie des émulsions obtenues . . . 91
IV.6.3 Critère de choix pour le micro-système adapté à l'émulsification . . . 93
IV.7 Conclusion . . . 97

V Étude expérimentale globale et in-situ de l'émulsification à travers le micro-canal "300-600" 99

V.1 Introduction . . . 100
V.2 Procédé d'émulsification à travers le micro-canal "300-600" . . . 101
V.2.1 Analyse des données d'émulsification à travers le "300-600" . . . 101

V.2.2 Étude hydrodynamique de l'écoulement diphasique au croisement du "300-600" . . . 104
V.2.3 Étude hydrodynamique de l'écoulement diphasique au niveau des sorties du "300-600" . . . 108
V.3 Prise en compte des propriétés physiques par analyse dimensionnelle . . . 113
V.4 Conservation de l'énergie mécanique en aval de la zone d'impact . . . 117
V.5 Mesure de la lumière laser collectée à travers le micro-canal "300-600" . . . 121
V.5.1 Méthode de post-traitement des données brutes . . . 122
V.5.2 Conditions de mise en application de la lumière laser collectée à travers le micro-canal "300-600" . . . 128
V.5.3 Visualisation à haute fréquence . . . 131
V.5.4 Cartographies de lumière laser collectée . . . 134
V.6 Conclusion . . . 138

VI Étude de l'émulsification à travers deux micro-canaux montés en série **140**
VI.1 Introduction . . . 140
VI.2 Montage en série de micro-canaux . . . 141
VI.2.1 Outils statistiques . . . 141
VI.2.2 Tests d'émulsification pour la configuration en série de micro-canaux . . . 143
VI.2.3 Dépenses énergétiques induites par l'affinement de la dispersion . . . 151
VI.2.4 Visualisations de l'écoulement diphasique au croisement . . . 153
VI.3 Conclusion . . . 158

Conclusion **159**

Bibliographie **164**

Annexes **183**
.1 Mouillabilité des cellules d'énumération en verre et en PMMA . . . 183
.2 Tensions de surface de solides et fluides communs. . . . 184
.3 Carte électronique portant la photo-diode . . . 186
.4 Exemple de lumière laser collectée dans un micro-canal. . . . 188
.5 Puissance de pompage : . . . 190
.6 Traitement de signal d'extinction Laser. . . . 191

Nomenclature

Symbole	Unité	Désignation
A_H	J	Constante de Hamaker qui est de l'ordre de 10^{-20} J.
$c.d.f.$	-	Fonction cumulative de densité de probabilité pour la loi log-normale
C_{sca}	m^2	Section efficace de diffusion
C_{indice}	mol/m^3	Concentration d'une substance chimique
D	m	Diamètre du mélangeur statique SMX
d^*	-	Normalisation du diamètre des gouttelettes compris entre 0 et 1
d	m	Diamètre d'une goutte
D_h	m	Diamètre hydraulique du canal d'écoulement
D_f	m^2/s	Coefficient de diffusion
$e_{c.d.f.}$	-	Erreur relative moyenne sur la fonction c.d.f.
$e_{p.d.f.}$	-	Erreur relative moyenne sur la fonction p.d.f.
g	m/s^2	Accélération terrestre g = 9,81 m/s^2
h	m	Épaisseur du milieu optique
h_c	m	Épaisseur critique d'un film liquide
HLB	-	Balance hydrophile-lipophile
G_I	-	Gamme de l'incertitude consentie
I	W/m^2	Intensité lumineuse
k^{-1}	m	Longueur capillaire
m	kg	Masse
n_{eau}	-	Indice de réfraction de l'eau : n_{eau} = 1,33
n_{PMMA}	-	Indice de réfraction du PMMA : n_{PMMA} = 1,49
n_{huile}	-	Indice de réfraction de l'huile de tournesol : n_{huille} = 1,49
p	-	Rapport des viscosités $p = \mu_d/\mu_c$
P(d_m)	-	Polydispersion du diamètre moyen des gouttelettes d_m
p.d.f	-	Fonction densité de probabilité pour la loi log-normale
P	bar	Pression d'eau

Symbole	Unité	Désignation
Q	mL/min	Débit volumique
R	J/mol.K	Constante universelle des gaz parfaits
r	m	Rayon d'une goutte
R_L	m	Rayon d'un film liquide
S	mol/m^3	Solubilité de la phase dispersée dans la phase continue
S_{emul}	m^2	Section du canal d'émulsion
S_e	m^2	Section du canal d'eau
S_h	m^2	Section du canal d'huile
T_{HV}	Volts	Tension relevée par la photo-diode lors une polarisation horizontale
T_{VV}	Volts	Tension relevée par la photo-diode pour une polarisation verticale
v	m/s	Vitesse d'écoulement
v_m	m/s	Vitesse moyenne de l'émulsion en sortie, avec $v_m = \frac{Q_e+Q_h}{2\,S_h}$
V_{md}	m^3/mol	Volume molaire de la phase dispersée
v_s	m/s	Vitesse de sédimentation
Ve	m^3/m^3	Volume d'eau contenu dans 1 m^3 d'émulsion
Vs	m^3/m^3	Volume d'un échantillon d'une centaine de gouttelettes

Indices

Symbole	Désignation
0	Indice relatif à l'état initial
10	Indice relatif au diamètre moyen arithmétique
32	Indice relatif au diamètre de sauter
$\overline{1/d}$	Indice relatif à l'inverse de la moyenne des diamètres portés à la puissance -1
c	Indice relatif à la phase continue
d	Indice relatif à la phase dispersée
diff	Indice relatif à la diffustion de la lumière
e	Indice relatif à l'eau
e/h	Indice relatif à l'interface eau-huile
emu	Indice relatif à l'émulsifiant
emul	Indice relatif à l'émulsion
g	Indice relatif au diamètre d'une goutte
h	Indice relatif à l'huile de tournesol

Symbole	Unité	Désignation
α	-	Quantile de l'échantillon de gouttelettes
α_{ext}	m^{-1}	Coefficient d'atténuation lumineuse
α_p	-	Facteur de proportionnalité
η_i/n_{min}	-	Rapport entre le nombre total de gouttes analysé et le nombre minimal de gouttes à analyser selon la table normal
η_i	-	Nombre de gouttelettes de l'échantillon analysé
n_{min}	-	Nombre minimale de gouttelettes
γ	N/m	Tension inter-faciale
Γ	kg/m^2	La concentration surfacique en émulsifiant à l'interface
λ	m	Longueur d'onde de la source lumineuse
σ_{ln}	-	Écart-type du logarithme du diamètre de gouttelettes ($\sigma_{ln} = ln\left(\sqrt{\frac{1+v1}{m1^2}}\right)$)
σ_g	-	Écart type des diamètres de gouttelettes
φ_d	-	Fraction volumique de la phase dispersée avec $\varphi_d = Q_d/(Q_d + Q_c)$
φ_e	-	Fraction volumique d'eau avec $\varphi_e = Q_e/(Q_e + Q_h)$
m_{ln}	-	moyenne arithmétique du logarithme des diamètres de gouttelettes ($\mu_{ln} = ln\left(\sqrt{\frac{m1^2}{(v1+m1^2)}}\right)$)
μ	Pa.s	Viscosité dynamique de l'eau
ρ	kg/m^3	Masse volumique
ρ_{HV}	-	Coefficient de corrélation co-polaire

Chapitre I

Introduction

L'humanité se développe dans un contexte mondial de diminution des réserves de matières premières, lié à une demande grandissante suscitée par une activité industrielle intense. Les ressources énergétiques ne dérogent point à ce constat. Parallèlement à la raréfaction des carburants fossiles, leur emploi conduit à des émissions de polluants infligeant des dégâts à l'environnement. De cela découle cet enjeu stratégique de développer des carburants alternatifs.

Dans ce contexte, le présent travail s'intéresse à la mise en œuvre de carburants non conventionnels. Le but recherché est la production de biodiesels liquides susceptibles à court terme d'êtres brulés dans des systèmes qui transformeraient le pouvoir calorifique de tels carburants en chaleur, en travail mécanique ou en énergie électrique (applications stationnaires). La valorisation de ces matières sur un plan purement énergétique permet la production de biocarburants alternatifs. D'après [Frédéric, 2009], contrairement aux biocarburants de première génération (agro-carburants), les biocarburants alternatifs n'utilisent pas les sources destinées à l'alimentation animale ou humaine pour leur élaboration.

Pendant cette dernière décennie, une dynamique est observée visant à exploiter le potentiel de cette filière. En Région des Pays de la Loire, cette dynamique a principalement été initiée par le département des systèmes énergétiques et environnement (DSEE)[1] de l'Ecole des Mines de Nantes. Sa première contribution porta sur la formulation d'un biodiesel émulsionné, mélange composé de 68% de graisse de canard, 15% d'eau, 15% de méthanol et 2% de tensio-actif [Kerihuel *et al.*, 2005, Kerihuel *et al.*, 2006]. Il s'en est suivi des tests de combustion pour ce combustible afin d'évaluer ses performances énergétiques et environnementales dans un moteur à

[1] $http://www.mines-nantes.fr/fr/Recherche/Departement-Systemes-Energetiques-et-Environnement$

combustion interne [Kumar *et al.*, 2006]. De cette dynamique une entreprise nommée S3D[2] est également née. Cette dernière propose des solutions de valorisation énergétique pour les déchets graisseux, organiques et/ou de la biomasse. La technique d'émulsification a également été élargie à d'autres sources comme le fuel lourd issu du raffinage de pétrole, dans lequel est dispersée une fraction d'eau sous la forme de gouttes [Tarlet *et al.*, 2010].

La présence d'eau et plus précisément de gouttes d'eau dispersées dans des graisses animales, de biodiesel ou de fuel lourd joue un rôle crucial pendant la combustion. Le phénomène thermo-physique induit par la présence de ces gouttelettes porte le nom de micro-explosion qui réduit les émissions des oxydes d'azote (NOx) et la production de particules carbonées (suies) [M.S. Kumar, 2009]. Ces résultats sont confirmés récemment par une équipe de chercheurs japonais usant d'un prototype à échelle industrielle [Tomoaki *et al.*, 2012].

Le terme micro-explosion a été proposé depuis longtemps (au moins depuis 1850 à Astrakhan en Russie !). Fondamentalement, les mécanismes par lesquels cette réduction de polluants siègent sont à la fois dans les phases gazeuse et liquide. En effet, la présence d'eau dans la phase gazeuse, inhibe la formation de suie étant donné qu'elle fournit une source de radicaux "OH". De plus, la présence d'eau à l'intérieur des gouttes d'huile (goutte d'émulsion), en qualité de dissipateur de chaleur, diminue la température de la flamme et par conséquent limite la formation des Nox d'origine "themique". Enfin, la vaporisation soudaine d'eau conduit à la fragmentation de la goutte d'émulsion (effet mécanique) en gouttelettes plus petites (micro-explosion) avec des temps de combustion plus courts [Jacques *et al.*, 1977, Mattiello *et al.*, 1992] (voir la figure I.1)[3].

Par ailleurs, la quantité d'eau dispersée dans la phase huileuse (biodiesel, graisses, etc.) influence la qualité de l'émulsion. En présence d'une émulsion de type eau dans huile, au delà d'une certaine concentration d'eau (20 à 25 $\%$ d'eau en masse) le risque d'une inversion de phase, c'est-à-dire la transformation en émulsion de type huile dans eau, est accru [Akay et Tong, 2000, Galindo Alvarez, 2008].

Sur le plan de sa qualité, la dispersion est évaluée par le coefficient de polydispersité ($P(d_m) = \frac{d_{10}}{\sigma_g}$). Ce coefficient quantifie le taux de dispersion de la granulométrie par rapport au diamètre moyen des gouttes ($d_{10} = \frac{1}{n} \sum_i d_i$). La polydispersité de l'émulsion est d'au-

[2] $http://www.sol3d.com/$

[3] $Source : http://www.altpetrol.com/en/4a-tech-overview.html$

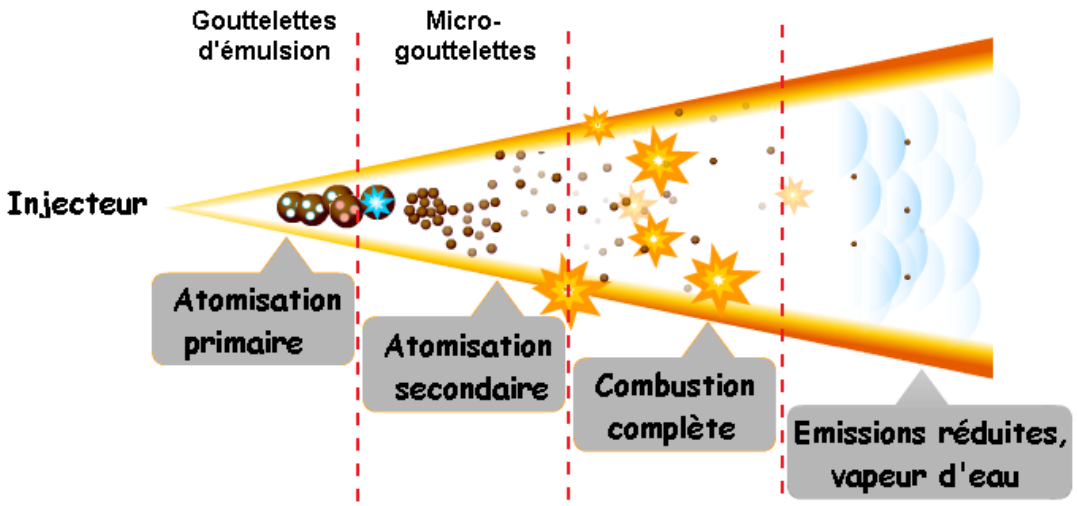


FIG. I.1: Principe de la micro-explosion.[3]

tant plus importante que ce coefficient "$P(d_m)$" augmente [Leal-Calderon *et al.*, 2007]. Il faut savoir que la simple présence d'une quantité donnée d'eau dispersée dans la phase huileuse ne suffit pas ; le diamètre de dispersion revêt une importance non négligeable. [Mura *et al.*, 2010, Mura *et al.*, 2012] montrent par exemple que le diamètre moyen arithmétique (d_{10}) optimum pour ces gouttes d'eau dispersées doit avoisiner 5 μm afin d'optimiser efficacement la combustion. Une étude récente [Ali M.A Attia, 2014], menée dans des conditions réelles de combustion au sein d'un moteur a confirmé l'impact de la granulométrie d'un diesel émulsionné (à fraction moyenne d'eau constante $\frac{Q_e}{Q_e+Q_h}$) sur les performances, les émissions des oxydes d'azote (NOx) et de particules carbonées (suie) dans un moteur à combustion interne. **La structure de l'émulsion a un effet évident sur les performances du moteur et donc la combustion. Un biodiesel émulsionné contenant des gouttelettes d'eau de grande taille produit moins d'émissions d'oxydes d'azote (NOx), tandis que les plus petites gouttelettes d'eau réduisent les émissions d'hydrocarbures imbrûlés et la fumée d'échappement, d'où le caractère bénéfique de la polydispersité de l'émulsion.**

Une fois mise en évidence la nécessité de disperser l'eau plus ou moins finement, pour optimiser la combustion d'un diesel émulsionné, on se heurte à d'autres difficultés. Il s'agit de contraintes principalement liées au procédé d'émulsification employé (voir la figure I.2). Parmi ces contraintes figurent : les instabilités thermodynamiques liées à la constitution physicochimique des émulsions qui limitent par exemple la durée de stockage [Abismaïl *et al.*, 1999, Galindo Alvarez, 2008]. Ajouté à cela, l'emploi des ressources mentionnées précédemment (graisses animales, fuels lourds ou même les huiles) qui sont très visqueuses, en guise de phase

continue, rend le procédé d'émulsification énergivore.

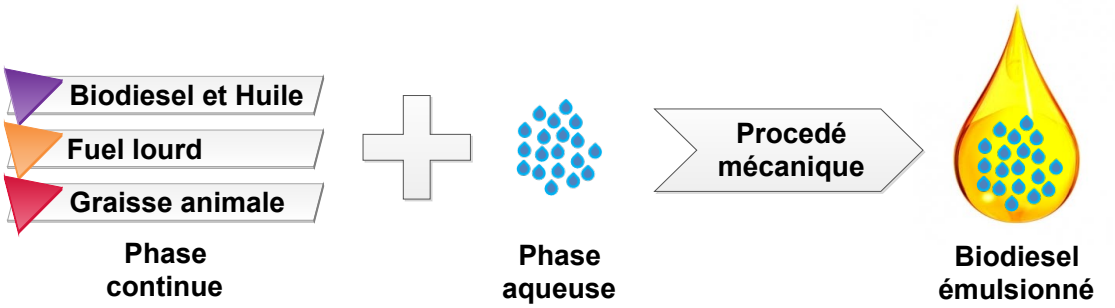


FIG. I.2: Principe d'émulsification.

La littérature scientifique recense un nombre considérable de technologies de mélangeurs, permettant de réaliser des émulsifications. Une première classification de ces systèmes est proposée par [H.Ã. Schubert, 2004] ; il les répartit en deux grandes catégories à savoir : les mélangeurs non-mécaniques et les mélangeurs mécaniques. Ces derniers sont largement employés et se composent des systèmes suivants : rotor-stator, haute pression, ultrasons et enfin des systèmes à micro-pores.

Les systèmes mécaniques sont nombreux et ils emploient des technologies de dispersion variées. Ces technologies peuvent être qualifiées de : complexes ou simples, onéreuses ou non, difficiles ou faciles à maintenir en état de fonctionnement. Dans ce travail, le choix d'une technologie d'émulsification, s'est orienté vers des micro-systèmes. En ce qui concerne les versions de ces systèmes testées lors de cette étude, elles sont de conception simple et permettent de traiter des débits suffisamment élevés pour alimenter des chaudières de moyenne puissance ($\leqslant$ 60 kW). Les micro-mélangeurs sont des systèmes miniaturisés réputés pour offrir des avantages en terme d'intensification des procédés [Kockmann, 2008]. La production d'émulsion de type huile dans eau dans des micro-mélangeurs est un sujet relativement bien éprouvé et documenté [Leal-Calderon *et al.*, 2007]. En revanche, la formation d'une émulsion de type eau dans huile constitue d'une manière générale une opération moins triviale car elle implique la mise en jeu de niveaux d'énergie plus élevés. Ceci explique sans doute que cette problématique soit aussi peu présente dans la littérature. Le choix de cette technologie s'appuie, en ce qui concerne notre étude, sur des résultats prometteurs issus d'un ensemble d'études menées précédemment au laboratoire GEPEA [Ait Mouheb, 2010, Nedjar *et al.*, 2011, Montillet *et al.*, 2013]. Les potentialités de la géométrie en croix des micro-canaux de taille sub-millimétrique ont en effet été investigués s'agissant du mélange liquide-liquide et du fractionnement liquide-liquide.

Concernant les systèmes de fractionnement usant de la technologie des micro-canaux, deux modes de classification des procédés sont proposés dans ce paragraphe. En premier, une classification basée selon la configuration des canaux : on y trouve la géométrie en T (T-junction) [De Menech *et al.*, 2008, Gupta *et al.*, 2009], la géométrie en co-courant (Co-flowing) [Guillot *et al.*, 2007, Guillot *et al.*, 2008] et enfin la géométrie en flow-focusing [Anna *et al.*, 2003, Ong *et al.*, 2007] (voir la figure I.3).

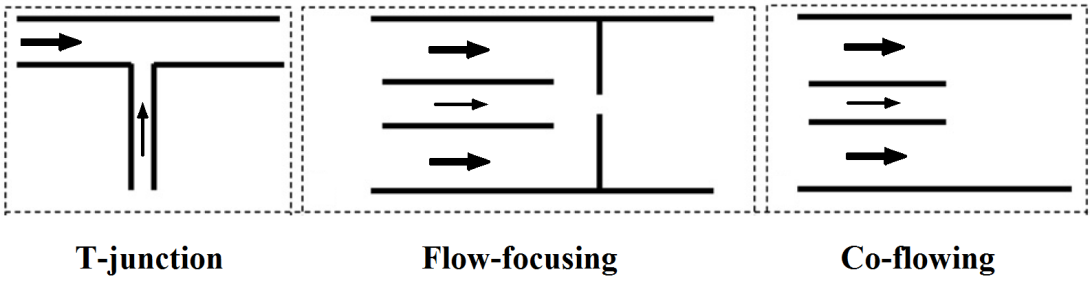


FIG. I.3: Forme géométrique des canaux [Zhao et Middelberg, 2011].

Une seconde classification est proposée, selon le **mécanisme de formation des gouttes**, lui même engendré par les conditions d'écoulement appliquées. Trois mécanismes ont été décrits dans la littérature : compression (Squeezing) [Garstecki *et al.*, 2006, Xu *et al.*, 2008], égouttement (Dripping) [Cramer *et al.*, 2004] et jaillissement (Jetting) [Utada *et al.*, 2007, Li *et al.*, 2011] (voir la figure I.4).

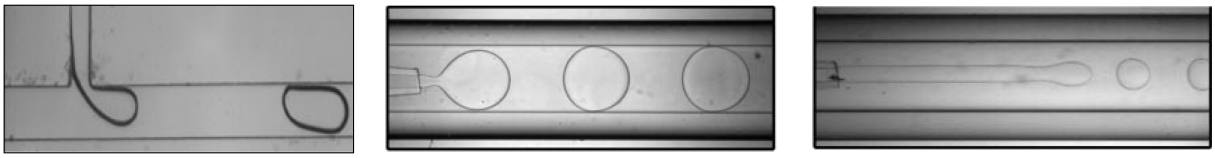


FIG. I.4: Mécanismes de formation des gouttes [Sivasamy *et al.*, 2011, Guillot *et al.*, 2008].

Les écoulements appliqués à travers le système micro-fluidique en croix développé dans cette étude (voir la figure I.5) se situent dans le régime laminaire. Cependant, Les débits de production d'émulsion dans notre étude sont de l'ordre de 60 à 100 mL/min, ce qui correspond à une gamme d'investigation plutôt élevée comparativement à ce qui est observé dans la littérature. Les nombres capillaires correspondants, définis par les forces générées dans le champ

d'écoulement, qui déforment les gouttes, en opposition aux forces de la tension inter-faciale qui résistent à la force de déformation ($Ca = \frac{\mu_c \, v_m}{\gamma_{e/h}}$ compris dans l'intervalle [3 - 8]), sont nettement au-dessus de ceux recensés par la littérature scientifique (Ca < 1,5) pour la même gamme de dimensions de canaux.

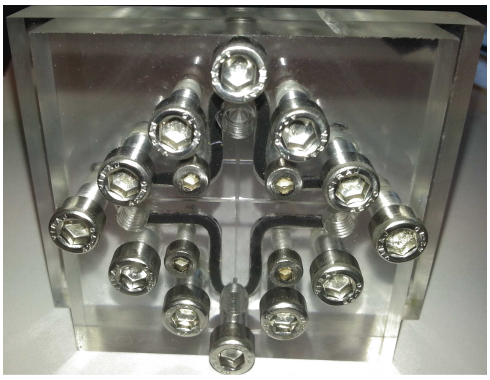


FIG. I.5: Micro-système conçu pour l'émulsification.

Afin d'étudier la faisabilité de l'emploi d'un tel dispositif pour une utilisation en tant que système de dispersion en ligne, ce travail de recherche s'est penché sur différents aspects comme le dimensionnement et l'amélioration du design des micro-systèmes. L'objectif présidant aux investigations étant d'obtenir un rapport qualité d'émulsion sur consommation énergétique acceptable. A cet effet, la compréhension des mécanismes régissant le fractionnement a été approché par une caractérisation de l'écoulement au sein des micro-mélangeurs.

Le manuscrit restituant les apports de cette étude est organisé en **"six"** chapitres. Cette introduction en est le premier. Elle est suivie du second chapitre qui réunit l'état des connaissances dans le domaine de la dispersion liquide/liquide. Nous nous attardons davantage sur les micro-systèmes de dispersion en nous focalisant sur les écoulements diphasiques siégeant dans les différentes géométries de micro-systèmes. **Nous présentons également à la fin de ce chapitre la stratégie adoptée dans le but de mener à terme cette étude**.

Le troisième chapitre contient une description des dispositifs expérimentaux utilisés. Deux méthodes expérimentales ont été mises en œuvre : la visualisation à haute fréquence permettant de caractériser l'hydrodynamique de l'écoulement au sein du micro-canal et la technique d'extinction laser employée afin de cartographier les zones de fractionnement liquide/liquide dans le micro-canal. La caractérisation de l'efficacité du procédé d'émulsification est effectuée par microscopie optique.

Le quatrième chapitre réunit les résultats des tests d'émulsification menés sur des micro-canaux de différentes géométries, conçus pour cette étude. Des résultats concernant une étude de l'hydrodynamique du fractionnement au sein de ces micro-canaux sont également rapportés. Le micro-système "300-600" s'est distingué par rapport au autres micro-systèmes par une génération d'importantes forces de fractionnement dans l'écoulement de l'émulsion et une force développée par unité de volume d'émulsion F_γ importante, tout en obtenant une granulométrie dont le diamètre moyen reste voisin de 10 μm. Les résultats d'émulsification eau dans huile obtenu à l'aide du "300-600" sont analysés en détail dans le cinquième chapitre. Ce chapitre propose une analyse des données aboutissant notamment à des corrélations adimensionnelles permettant de prévoir le fractionnement.

Dans le sixième et dernier chapitre sont présentés, en guise de proposition de perspectives, les résultats d'une connexion en série de deux micro-canaux. Cette étude s'intéresse notamment à la dépense énergétique, sous forme de chute de pression, engendrée par l'emploi d'un micro-canal supplémentaire, comparativement à l'effet engendré sur la granulométrie de l'émulsion. A l'aide de la visualisation à haute fréquence, une explication des mécanismes gouvernant le fractionnement des gouttelettes aux second micro-canal a été également réalisée.

Chapitre II

État de l'art bibliographique

Sommaire

II.1 Introduction **8**

II.2 Formation et physicochimie des émulsions **9**

II.2.1 Mécanismes de déstabilisation des émulsions 11

II.2.2 Le rôle des émulsifiants 15

II.3 Caractéristiques des émulsions **18**

II.3.1 La viscosité des émulsions 18

II.3.2 Caractérisation des émulsions (Granulométrie) 20

II.4 Mécanismes de fractionnement liquide-liquide **25**

II.4.1 Les nombres adimensionnels 27

II.4.2 La surpression de Young-Laplace 29

II.4.3 Fractionnement de gouttes en régime laminaire 30

II.5 Les systèmes mécaniques de production d'émulsions **33**

II.5.1 Dispersion liquide-liquide dans les micro-canaux 35

II.5.2 Les écoulements diphasiques dans les micro-canaux 36

II.5.3 Les jets en impact confinés 41

II.5.4 Vitesses d'écoulement et diamètres représentatifs de gouttes recensés . . 42

II.6 Diffusion de la lumière par des gouttes **43**

II.7 Conclusion **48**

II.1 Introduction

Ce chapitre présente une synthèse bibliographique sur les connaissances de base nécessaires pour aborder un sujet qui traite d'émulsification. Dans un premier temps, il est essentiel de rappeler

des notions telles que la définition d'une émulsion, les mécanismes présidant à sa formation et également les moyens de caractérisation. Les mécanismes de déstabilisation thermodynamiques possèdent également un intérêt de premier plan permettant de cerner la physicochimie des émulsions.

Le renseignement des conditions intrinsèques pour chaque phase (la viscosité, la tension de surface et le diamètre moyen) ou encore des conditions contextuelles (les vitesses d'écoulement des phases et le diamètre hydraulique des canaux) est nécessaire. Contrairement à un procédé statique, une émulsion formée à l'aide d'un procédé continu nécessite la maitrise de tels paramètres dans le but de renseigner sur l'efficacité du procédé. De plus, selon [Boutier, 2012], en écoulement diphasique la détermination de la granulométrie des gouttes demeure une aide très précieuse dans le but d'appréhender les phénomènes physiques au sein des écoulements.

Enfin, un recensement des mécanismes de fractionnement liés à la génération d'écoulements confinés dans des micro-canaux plus au moins complexes est nécessaire afin de bien positionner la contribution du présent travail.

Note : Ce présent chapitre contient des zones grisées et précédées du signe suivant : ⚠

Ces vignettes permettent de relier les informations compilées pour cette recherche bibliographique au procédé d'émulsification étudié dans ce travail. On retrouvera de telles vignettes dans d'autres parties de ce rapport.

II.2 Formation et physicochimie des émulsions

Par définition[1], le terme émulsion est tirée du latin : *emulsus, de emulgere* et en Français : traire, extraire. Ce terme désigne aujourd'hui un système comprenant au moins deux phases immiscibles, dont l'une est dispersée dans l'autre [Brochette, 1999].

L'émulsification est le processus permettant le mélange d'au moins deux liquides immiscibles. Cette opération qui consiste à disperser, sous forme de gouttelettes, une phase liquide dans un autre liquide immiscible (dispersion liquide-liquide) nécessite une dépense d'énergie mécanique conséquente qui permet de vaincre la tension à l'interface des liquides immiscibles $\gamma_{e/h}$. La taille des gouttes dispersées est intimement liée à la quantité d'énergie dépensée [Brochette, 1999, Galindo Alvarez, 2008].

[1] http ://www.larousse.fr/encyclopedie/divers/émulsion/47412

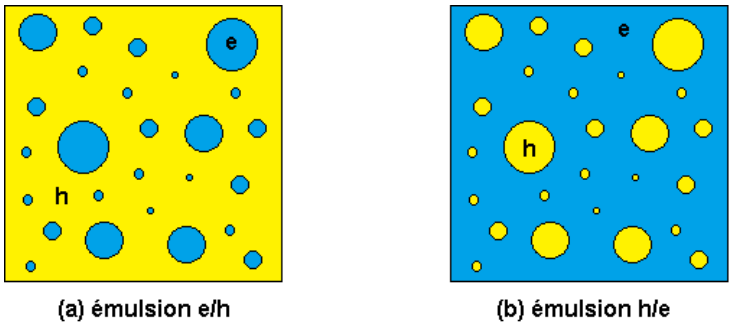


FIG. II.1: Émulsions simples [Galindo Alvarez, 2008].

Dans le cas d'une émulsion simple II.1, on distingue alors une phase dispersée et une phase continue. On parle d'émulsion de type eau dans huile (e/h, voir la figure II.1-a), si la phase continue représente la phase lipidique. Dans le cas contraire, on parle d'une émulsion huile dans eau (h/e, voir la figure II.1-b) si la phase continue est composée de molécules électriquement polaires (phase aqueuse) [Brochette, 1999, Salager, 2000].

A titre indicatif, la figure II.2 recense d'autres types d'émulsions pouvant être produites. Il s'agit d'émulsions multiples dont la complexité croit avec le nombre de dispersions d'une phase dans l'autre [Galindo Alvarez, 2008].

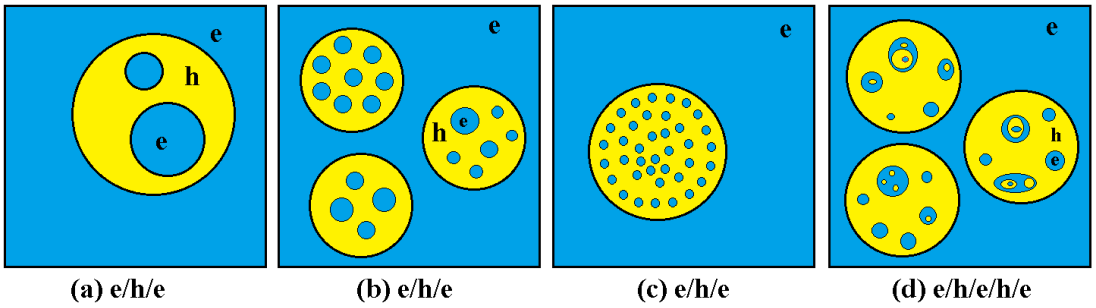


FIG. II.2: a - Émulsions multiples simples, b - Émulsions multiples remplies, c - Émulsions multiples très remplies, d - Émulsions multiples complexes [Galindo Alvarez, 2008].

En considérant le diamètre moyen des gouttes dispersées comme moyen de distinction, les émulsions peuvent êtres réparties en trois groupes, à savoir : micro-émulsions (0,001-0,1 μm), mini-émulsions (0,1 - 1μm) et macro-émulsions (0,5 - 100μm). Les deux dernières catégories sont instables sur un plan purement thermodynamique, ce qui conduit à la coalescence des gouttes et la séparation de phases [Windhab *et al.*, 2005]. Schématiquement, la stabilité des émulsions est inversement proportionnelle au diamètre des gouttes de la phase dispersée. **Mais elle dépend également de la nature dispersée ou non de la taille des gouttelettes**. La limite

de stabilité d'une émulsion est estimée à 0,1 μm de diamètre moyen des gouttes, au-dessus de cette limite les émulsions sont considérées instables [Zendejas, 2007]. Macroscopiquement, l'aspect (couleur, opacité) d'une émulsion dépend également de la granulométrie (voir le tableau II.1).

Taille des gouttes	**Aspect de l'émulsion**
> 1,0 μm	Laiteux
0,1 - 1,0 μm	Bleu - blanc (Effet de Tyndall)
0,05 - 0,1 μm	Gris (Semi - transparent)
< 0,05 μm	Transparent

TAB. II.1: Aspect global des émulsions en fonction du diamètre des gouttes représentatif [Zendejas, 2007].

II.2.1 Mécanismes de déstabilisation des émulsions

Comme explicité plus haut, les émulsions possèdent un caractère thermodynamique instable, ceci conduisant inéluctablement à la séparation des phases. Ce constat demeure valable en présence d'émulsifiants car tout système a tendance à regagner son état d'énergie stable (séparation des phases). Les phénomènes physicochimiques conduisant à cette séparation de phases sont énumérés ci-après (voir la figure II.3). D'après [Galindo Alvarez, 2008] ces phénomènes peuvent être classés en deux grandes catégories : les phénomènes réversibles et non-réversibles.

a) Sédimentation (e/h) et crémage (h/e)

La sédimentation de la phase dispersée dans le cas d'une émulsion (e/h) est une précipitation de la phase dispersée, contrairement au crémage qui lui est une ascension de la phase dispersée dans une émulsion (h/e). L'apparition de ces phénomènes physiques est le résultat d'une déstabilisation des émulsions dont le moteur est constitué respectivement par la pesanteur et la poussée d'Archimède.

Bien que le système soit nécessairement en équilibre cinétique, les gouttes d'une phase dispersée sont animées de mouvements induits par des forces d'attraction et de répulsion (Les forces de Van der Waals, le mouvement brownien, les interactions électriques, etc.). Cette compétition des interactions entre les gouttes, ajouté à l'effet de la pesanteur ou la poussée d'Archimède aboutit à une non homogénéité de l'émulsion laissée sans agitation.

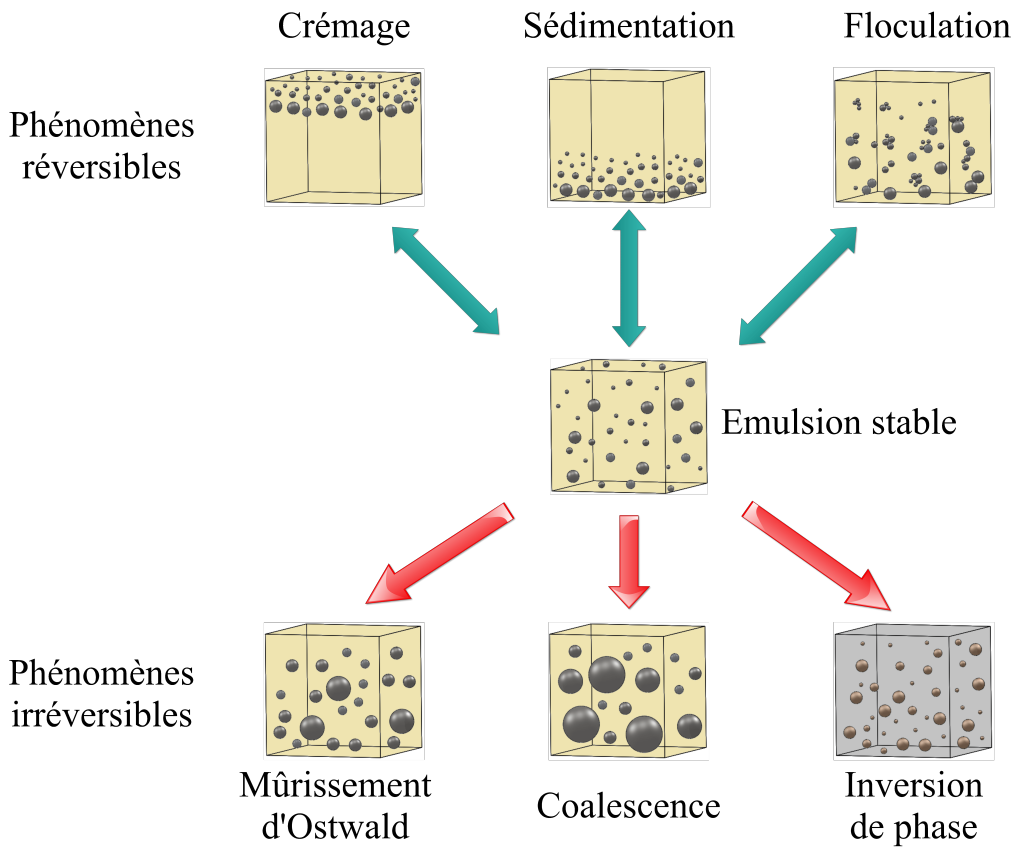


FIG. II.3: Les phénomènes intervenant dans la déstabilisation des émulsions [Abismaïl *et al.*, 1999, Cancelier et Poux, 2004, Galindo Alvarez, 2008].

Considérons maintenant la vitesse de sédimentation "v_s" d'une goutte de rayon "r", de masse "m", plongée dans une phase continue de viscosité "μ_c". Cette goutte étant soumise à une force due au champ de pesanteur ($F = m\ g$), sa vitesse de déplacement va augmenter. Du fait des frottements de la goutte sur le fluide constituant la phase continue, une résistance visqueuse se développe proportionnellement à la vitesse de la particule (loi de Stockes valable dans le cas des dispersions diluées) : $R = 6\ \pi\ \mu_c\ r\ v$ [Brochette, 1999].

Lorsque ces deux forces se compensent, la particule atteint sa vitesse limite, qui est la vitesse de sédimentation :

$$v_s = \frac{m\ g}{6\ \pi\ \mu_c\ r} = \frac{2\ \Delta\rho\ g\ r^2}{9\ \mu_c} \tag{II.1}$$

Avec

- v_s : vitesse de sédimentation [m/s],
- m : masse apparente des particules [kg],
- g : accélération terrestre [m/s^2].
- μ_c : viscosité de la phase continue [Pa.s],

– r : rayon des particules [m],

– $\Delta\rho$: différence de masse volumique entre goutte (ρ_d) et phase continue (ρ_c), avec $\Delta\rho = \rho_c - \rho_d$ [kg/m^3].

b) Floculation

La floculation a pour origine une "adhésivité" des gouttelettes, elle résulte d'une compétition entre agitation thermique et forces de Van der Waals. Les gouttelettes d'une émulsion sont en effet animées d'un mouvement brownien, qui induit des chocs entre gouttelettes. Si une interaction attractive suffisante existe entre les gouttes ainsi mises en contact, elles restent associées [Brochette, 1999].

c) Coalescence

la coalescence, qui est le phénomène de dégradation ultime des émulsions. La coalescence est l'inverse de l'étape de dispersion : deux ou plusieurs gouttes vont fusionner pour former une goutte plus grosse. Le processus se répétant, la phase dispersée dé-mixe, et l'on revient au système diphasique de départ. Tous les phénomènes qui favorisent un rapprochement durable des gouttes placent le système dans une situation a priori favorable à la coalescence. Les mécanismes intimes de la coalescence sont encore mal connus, mais la physique des films minces (séparant deux gouttes en contact) est un domaine actif de la recherche contemporaine [Brochette, 1999].

L'épaisseur critique hc, en dessous de laquelle deux gouttes sont susceptibles d'êtres déstabilisées, est obtenue en équilibrant la pression de disjonction du film entre les gouttes et leur pression capillaire. Elle dépend de la présence de tensioactifs, de la viscosité de la phase continue. Dans le cas général, son expression est donnée par [Abdou Rachid Thiam, 2010] :

$$h_c = 0,48\ (\frac{A_H\ R_L^2}{\gamma}) \tag{II.2}$$

Avec :

– R_L : désigne le rayon du film [m],

– A_H : la constante de Hamaker qui est de l'ordre de 10^{-20} J,

– γ : tension inter-faciale [N/m].

⚠

Par exemple, en prenant deux gouttes qui forment un film interstitiel d'huile de tournesol de 50 μm de rayon et une tension de surface de l'ordre de 33 mN/m, on trouve une épaisseur critique de 140 nm.

d) Mûrissement d'Ostwald

Le mûrissement d'Ostwald est favorisé par la présence d'une granulométrie dispersée et d'autre part de la surpression de Laplace. À l'issue d'une opération d'émulsification, une population de gouttelettes de taille généralement non homogène est produite (polydispersion). Dans chaque classe de taille existe une surpression de Laplace différente, laquelle est plus élevée pour les faibles tailles de gouttelettes. L'existence de cette surpression implique que le potentiel chimique dans les petites gouttes est plus élevé que dans les grosses gouttes. Le retour vers l'équilibre thermodynamique s'accompagne donc d'un flux de matière des petites gouttes vers les plus grosses gouttes, au travers de la phase continue. Les petites gouttes disparaissent au profit des plus grosses, et la granulométrie s'en voit modifiée. La relation de Lifshitz-Slezov-Wagner permet de décrire le taux du murissement "ω_s" [Brochette, 1999, Cancelier et Poux, 2004] :

$$\omega_s = \frac{dr^3}{dt} = \frac{8\,\gamma\,V_m^2\,S\,D_f}{9\,R\,T} \tag{II.3}$$

avec :

- ω_s : taux de murissement [m^3/s],
- r : rayon de la goutte $[m]$,
- t : temps $[s]$,
- R : constante universelle des gaz [J/mol.K],
- T : température $[K]$,
- γ : Tension interfaciale [N/m],
- V_m : volume molaire de la phase dispersée $[m^3/mol]$,
- D_f : coefficient de diffusion $[m^2/s]$,
- S : solubilité de la phase dispersée dans le milieu continu $[mol.m^{-3}]$.

e) Inversion de phase

L'inversion de phase est le phénomène par lequel la phase dispersée devient la phase continue. L'inversion de phase peut être réalisée en changeant la température du système, par chan-

gement de la fraction volumique des phases, par addition de sels ou en imposant des flux particuliers ; par exemple un écoulement d'élongation [Akay et Tong, 2000].

Ce processus est défini par certains auteurs comme un événement catastrophique, car il est un changement soudain et dramatique de la morphologie de la dispersion due à un changement cependant progressif dans les conditions expérimentales. Paradoxalement, l'inversion de phase peut parfois être considérée comme un phénomène tout à fait recherché et volontairement provoqué pour la formulation d'émulsions, notamment pour l'industrie pharmaceutique ou encore cosmétique [Preziosi *et al.*, 2013].

II.2.2 Le rôle des émulsifiants

Les phénomènes de déstabilisation énoncés plus haut induisent inévitablement une séparation des phases constituant toute dispersion. Il est connu que pour obtenir une dispersion liquide/liquide plus stable, il est nécessaire d'utiliser un agent de liaison soluble dans l'une des phases afin d'obtenir une interpénétration possible des deux phases immiscibles. Ces agents de liaisons appelés émulsifiants prolongent cette stabilité dans le temps par exemple pour un stockage éventuel à long terme.

[Mcclements, 2005] décrit l'émulsifiant comme étant toute substance tensioactive qui est capable d'être absorbée à l'interface liquide-liquide et limitant les instabilités citées plus haut (II.2.1, 11). Idéalement, l'émulsifiant doit être absorbé rapidement à l'interface au cours de l'homogénéisation, réduire la tension inter-faciale et empêcher la coalescence des gouttelettes. En outre, il est souvent important que l'émulsifiant forme une membrane afin d'empêcher l'agrégation inter-faciale des gouttelettes (floculation et/ou coalescence) dans les conditions environnementales, au cours de fabrication des émulsions, leur transport, leur stockage et/ou leur utilisation.

[Larpent, 1995] indique que le terme anglais de ces substances est SURFACTANT, une abréviation de SURFace ACTive AgeNTS (agent de surface actif). Ces molécules tensioactives comportent deux parties de polarités différentes :

- Une partie apolaire, hydrophobe, lipophile, présentant une affinité pour les phases lipidiques soluble dans ces phases,
- Une partie polaire, hydrophile, présentant une affinité pour l'eau (soluble dans l'eau).

Les deux propriétés essentielles des composés tensioactifs qui permettent de comprendre

les phénomènes observés et qui déterminent leurs domaines d'application sont :

- l'adsorption aux interfaces qui provoque une diminution des tensions inter-faciales. Ce phénomène facilite le fractionnement des gouttes (dispersion) ;
- l'auto-agrégation en solution ou micellisation, qui gouverne les propriétés de solubilisation et de micro-émulsification.

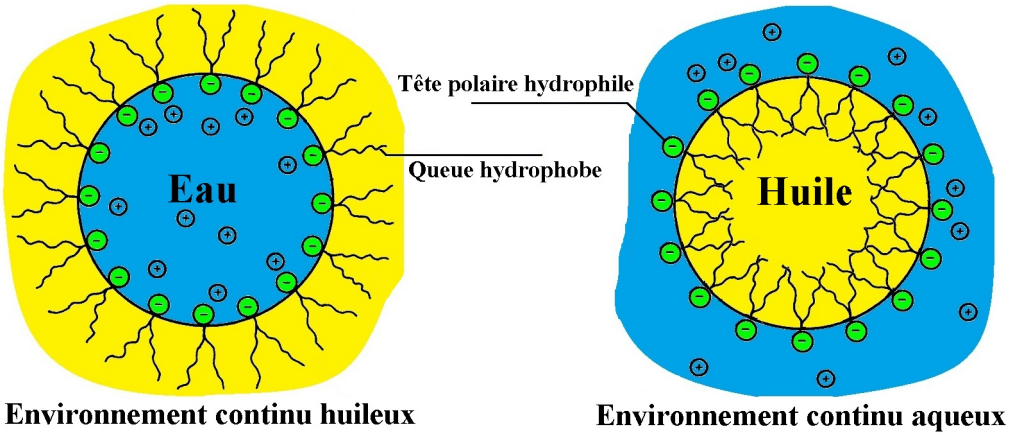


FIG. II.4: Schéma d'une goutte d'eau dans l'huile (émulsion e/h à gauche) et d'une goutte d'huile dans l'eau (émulsion h/e à droite) en présence d'émulsifiant [Guilbot, 2006].

D'après [Metijevic, 1969], pour une émulsion se trouvant dans des conditions d'équilibre, il existe une concentration en émulsifiant définie à l'interface qui augmente en fonction de la concentration dans le milieu jusqu'à ce que la dite concentration micellaire critique (CMC) est atteinte. Si tel est le cas, l'interface est entièrement recouverte d'un film de surfactant. La dépendance de la tension inter-faciale d'équilibre "γ" à la concentration de l'émulsifiant du milieu "C_e" peut être approchée en utilisant l'équation de Szyskowski, comme explicité ci-dessous :

$$\gamma = \gamma_0 - k_1 \ln(1 + k_2 C_e) \tag{II.4}$$

Avec :

- γ : tension de surface à l'instant t,
- γ_0 : tension de l'interface initialement,
- k_1 et k_2 : étant des constantes d'ajustement,
- C_{emu} : la concentration de l'émulsifiant.

La concentration en émulsifiant à l'interface par unité de surface interfaciale "Γ" à température constante "T" est donnée par l'isotherme de Gibbs [Windhab *et al.*, 2005]

$$\Gamma = -\frac{1}{RT}\frac{\partial\gamma}{\partial \ln C_e}|_T \tag{II.5}$$

Avec :

- R : Constante universelle des gag parfaits avec R = 8,314 J/mol.K,
- γ : Tension inter-faciale,
- C_{emu} : la concentration de l'émulsifiant.

a) La balance hydrophile/lipophile, HLB

Le rapport HLB est une grandeur caractéristique d'un émulsifiant permettant de préciser sa nature plutôt hydrophile ou lipophile. En d'autres termes, HLB exprime le rapport entre la proportion des groupements hydrophiles et la longueur de l'enchainement lipophile. [Poré, 1992].

Ainsi, le paramètre HLB qui augmente avec le caractère hydrophile du tensioactif, a été défini par Griffin en 1949. Il est facilement accessible par le calcul dans le cas des tensioactifs non-ioniques : il est d'ailleurs souvent précisé par les fournisseurs [Larpent, 1995]. Le classement des HLB se fait dans l'échelle de DAVIES, comprise entre 1 à 20 [Davies, 1957]. Les émulsifiants à caractère **lipophile** sont identifiés par un HLB inférieur à **9** (HLB < 9). Dans le cas où le HLB est compris entre **11** et **20** le caractère **hydrophile** est dominant [Poré, 1992].

La figure II.5 réunit une indication des valeurs HLB caractérisant l'obtention des différentes émulsions. Cette figure est issue de la superposition de trois sources bibliographiques réunies sur un même schéma.

Un mélange d'émulsifiants peut être formé pour permettre une meilleure émulsification, pour cela on définit une valeur de HLB nommée HLB requis (HLBR) ou critique. La formule pour calculer la valeur du HLBR ou critique est donnée ci-dessous :

$$HLBR = \left(\frac{m_{emu1}}{m_{emu1}+m_{emu2}} \times HLB_{emu1}\right) + \left(\frac{m_{emu2}}{m_{emu1}+m_{emu2}} \times HLB_{emu2}\right) \tag{II.6}$$

Avec :

- m_{emu1} et m_{emu2} : les masses respectives de l'émulsifiant 1 et 2,
- HLB_{emu1} et HLB_{emu2} : les valeurs de HLB respectives de l'émulsifiant 1 et 2.

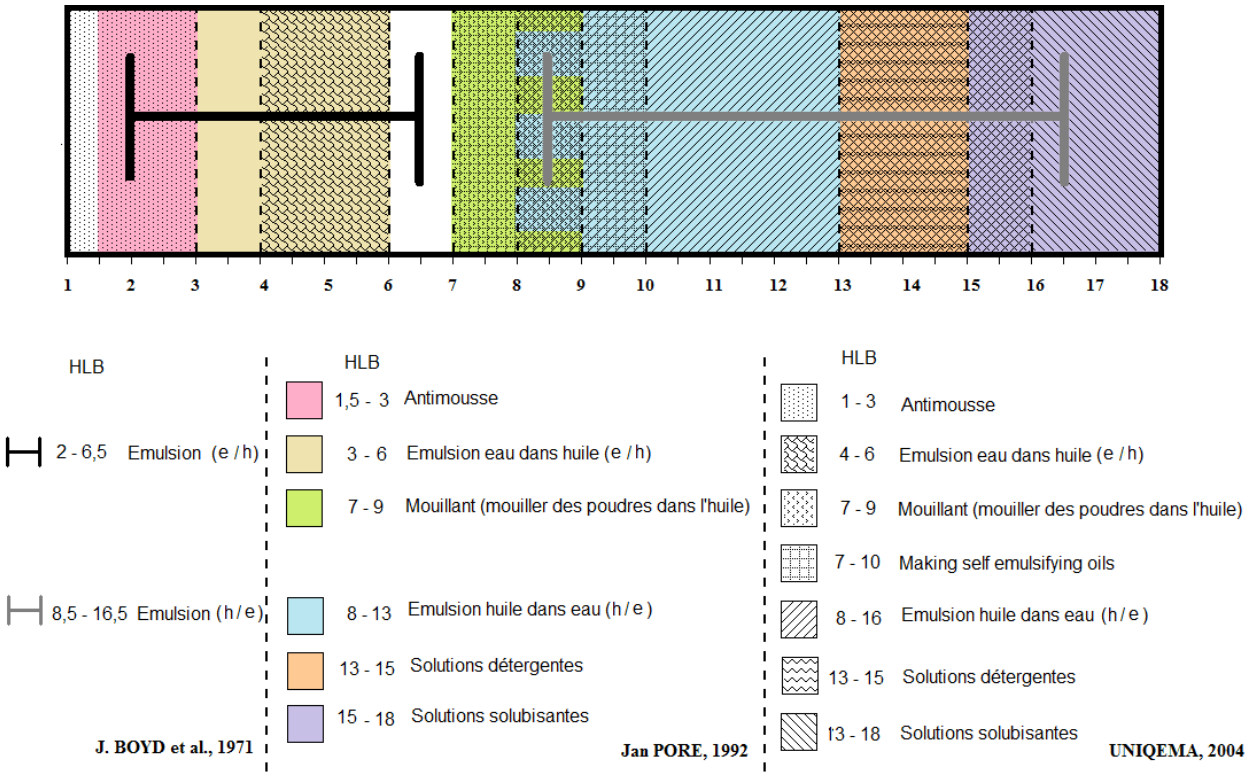


FIG. II.5: Échelle HLB pour les différents types de dispersions [Boyd *et al.*, 1972, Poré, 1992].

Dans le cas où un seul émulsifiant est employé ($m_{emu1} = m_{emu2} = m_{emu}$), la formule II.6 ci-dessus prend la forme suivante :

$$HLBR = m_{emu} \times HLB_e \tag{II.7}$$

II.3 Caractéristiques des émulsions

II.3.1 La viscosité des émulsions

Einstein (1911) est le premier à établir un modèle des viscosités pour les suspensions colloïdales très diluées (avec un espacement entre les particules supérieur à leur diamètre), dans lesquelles n'existe aucune interaction entre les particules. Ces particules sont considérées comme étant parfaitement sphériques (sphères solides) [Farah *et al.*, 2005, Sherman, 1962] :

$$\mu_e = \mu_c \left(1 + a\,\varphi_d + b\,\varphi_d^2 + c\,\varphi_d^3\right) \tag{II.8}$$

Avec :

- μ_e : la viscosité de l'émulsion $[Pa.s]$,
- μ_c : la viscosité de la phase continue $[Pa.s]$,
- φ_d : c'est la fraction volumique de la phase dispersée,

– a, b, c : constantes consignées dans le tableau II.2.

a	b	c	Référence
4 - 5	-	-	(e/h) Albers, W. A., Doctorate Thesis (Utrecht 1957).
2,3 - 2,8	0 - 9,7	-	(e/h) Sherman, P., J. Soc. Chem. Ind. Lond. Suppl.Issue No. 2, S 70 (1950).
1,5 - 2,3	1,6 - 8,5	-	(h/e) Tawab, M. A. and S. G. Mason, Trans. FaradaySoc. 54, 1712 (1958).
1,5 - 2,3	1,6 - 8,5	-	(h/e) Van der Waarden, M., J. Colloid Sci. 9, 215(1954).

TAB. II.2: Les constantes de l'équation d'Einstein pour les émulsions diluées [Sherman, 1962].

Une autre expression de l'équation II.8 est proposée par [Taylor, 1932] en considérant l'influence des viscosités des deux phases de l'émulsion. Cette loi est valable pour une faible densité de concentration la phase dispersée (émulsion diluée) [Farah *et al.*, 2005].

$$\mu_e = \mu_c \left(1 + \left[2,5 \left(\frac{p + 0,4}{p + 1}\right)\right] \varphi_d\right) \tag{II.9}$$

Avec :

– μ_e viscosité de l'émulsion,

– μ_d viscosité de la phase dispersée,

– μ_c : viscosité de la phase continue,

– p : le rapport des viscosités dynamiques ($p = \frac{\mu_d}{\mu_c}$),

– φ_d : c'est la fraction volumique de la phase dispersée.

★ **N.B. : Ces expressions donnant la viscosité des émulsions ne sont valables que dans une plage restreinte de température ; généralement elle sont utilisables à température constante** [Farah *et al.*, 2005].

⚠

A titre d'exemple, considérons des émulsions de type (e/h) dont le pourcentage d'eau dispersé n'excède pas 15% ($\varphi_{max} = 0,15$), une huile de tournesol commerciale est utilisée en guise de phase continue ($\mu_c = 52,2.10^{-3}$ Pa.s à 25°C) et de l'eau en guise de phase dispersée ($\mu_d = 0,91.10^{-3}$ Pa.s à 25°C). Le rapport des viscosités entre les deux phases est : p = 1,74.10^{-2}. Avec 15% de dispersion d'eau ($\varphi = 0,15$) on obtient une viscosité relative de l'émulsion égale à : $\mu_r = 1,1539$ Pa.s. Dans ce cas la viscosité de l'émulsion sera égale à : $\mu_{emul} = \mu_r \times \mu_c = 60,2.10^{-2} Pa.s$. **Par ce calcul on vérifie l'augmentation de la viscosité de l'émulsion par la dispersion de gouttelettes d'eau.**

L'emploi des propriétés des deux phases énoncées ci-avant permet de représenter graphiquement cette équation (II.9). Pour une phase continue (huile de tournesol) et une phase dispersée (eau) dont la viscosité dynamique est respectivement $\mu_c = 52,2.10^{-3}$ Pa.s et $\mu_d = 0,91.10^{-3}$ Pa.s, la figure II.6 représente l'influence de la fraction volumique de la phase dispersée φ_d sur la viscosité dynamique de l'émulsion μ_e. On remarque que l'augmentation de la fraction de phase dispersée fait croitre la viscosité dynamique de l'émulsion.

La figure II.7 représente l'influence de la viscosité dynamique de la phase continue μ_c sur la viscosité dynamique de l'émulsion obtenue et pour une fraction volumique de la phase dispersée φ_d allant de 0 à 15 %. La viscosité de la phase dispersée étant maintenue constant à $\mu_d = 0,91.10^{-3}$.

II.3.2 Caractérisation des émulsions (Granulométrie)

La caractérisation d'une émulsion par la détermination de la taille des gouttes est très employée. Généralement, la structure d'une émulsion est caractérisée par sa distribution statistique des tailles de gouttes. D'après [Jurado *et al.*, 2007], la distribution de taille de gouttelettes influe les propriétés de l'émulsion : dans les aspects tels que la vitesse de dégradation, la stabilité à long terme, la résistance à l'écrémage, la texture et l'apparence optique, la viscosité, l'efficacité physiologique, et réactivité chimique comme, par exemple, dans la cinétique des réactions de polymérisation ou dans des réactions catalysées par la lipase où la zone inter-faciale entre l'huile et la phase aqueuse a une forte influence.

La caractérisation expérimentale d'une distribution des tailles de gouttes d'une émulsion conduit à l'obtention d'une série discrétisée de données. La fonction de distribution de proba-

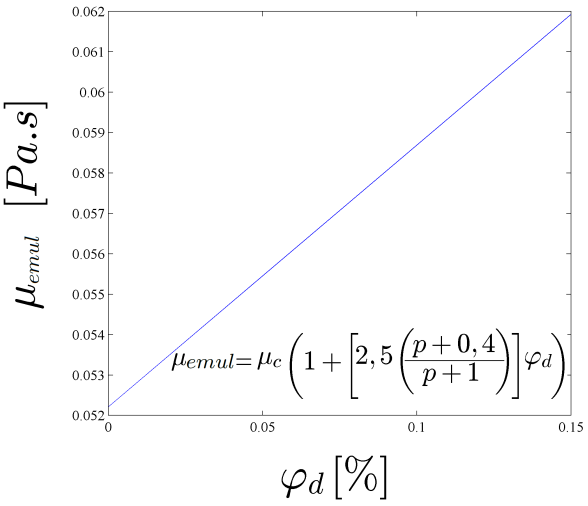


FIG. II.6: Influence de la fraction volumique dispersée φ sur la viscosité de l'émulsion μ_{emul} pour $\mu_c = 0,052\ Pas.s$ et T constant, selon l'équation II.9.

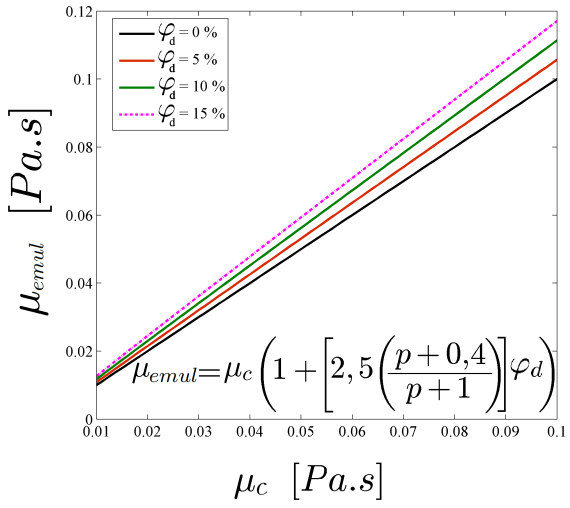


FIG. II.7: Influence de la viscosité de la phase continue μ_c sur la viscosité de l'émulsion μ_{emul} pour $\mu_d = 0,001\ Pas.s$ et T constant, selon l'équation II.9.

bilité (en anglais : Probability Distribution Function ou p.d.f.) permet de décrire la distribution de taille des gouttes d'émulsions [Pena, 2003]. La distribution de type log-normale demeure la plus fréquemment répandue pour la description des dispersions d'émulsions ; elle possède pour expression :

$$f(d_g; d_{10}, \sigma_g) = \frac{1}{d_g\ \sigma_{ln}\ \sqrt{2\,\pi}}\ e^{-\frac{(ln(d_g)-m_{ln})^2}{2\,\sigma_{ln}^2}} \tag{II.10}$$

Avec :

- d_g : diamètre d'une gouttelette dispersée en [μm],
- σ_{ln} : écart-type du logarithme du diamètre de gouttelettes ($\sigma_{ln} = ln\sqrt{\frac{1+\sigma_g}{d_{10}^2}}$),
- m_{ln} : moyenne arithmétique des diamètres de gouttelettes ($m_{ln} = log\sqrt{\frac{d_{10}^2}{(\sigma_g + d_{10}.^2)}}$).

D'autres distributions statistiques sont rencontrées pour décrire les émulsions et sont réunies sur la figure II.8.

La fonction cumulative de la distribution log-normale est donnée par l'expression ci-dessous :

$$c.d.f. = \frac{1}{2}\left[1 + erf\left(\frac{ln(d_g) - m_{ln}}{\sqrt{2}\,\sigma_{ln}}\right)\right] \tag{II.11}$$

avec :

- erf : la fonction erreur de Gauss avec $erf(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}}\ \int_0^x e^{-t^2}\ dt$,

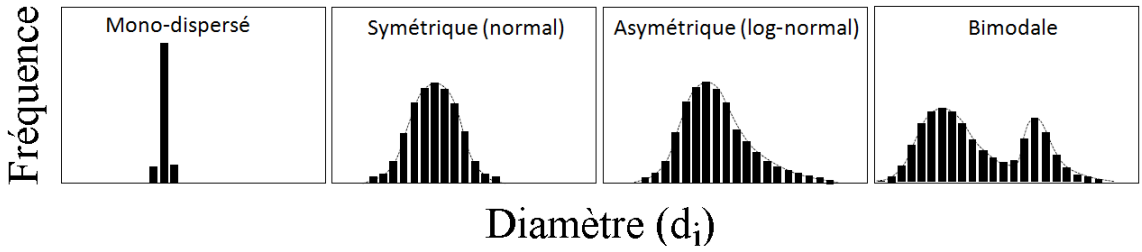


FIG. II.8: Distributions de taille de gouttes retrouvées couramment dans les émulsions [Pena, 2003].

Le diamètre moyen des gouttes est très employé pour caractériser une émulsion. Un diamètre moyen peut cependant être calculé de différentes manières, comme par rapport au diamètre, par rapport à la surface ou au volume des gouttelettes. Le tableau II.3, réunit différents diamètres caractéristiques qui sont proposés dans la littérature scientifique. Ces diamètres répertoriés possèdent un sens physique significatif. En guise d'exemple, le volume moyen d_v correspondant à la taille d'une population de gouttes mono-dispersée dont le nombre atteint n_0 et de volume v_0 présent dans l'émulsion initiale. De même, le diamètre moyen de Sauter d_{32} est la taille de gouttes ayant le même rapport volume-surface comparativement à la population totale [Pena, 2003]. Cette mesure moyennée est largement utilisée dans le domaine des sprays pour évaluer les caractéristiques de l'atomisation des gouttelettes, le diamètre moyen de l'échantillon est disponible malgré la poly-dispersion qui affecte la population considérée [Mura *et al.*, 2010]. **Nous avons en outre introduit un autre diamètre moyen. Celui-ci est calculé à partir de l'inverse de la moyenne du diamètre de la gouttelette porté à la puissance -1, il est noté** $d_{1/d}$.

Le nombre de gouttes (n_i) nécessaire pour une analyse granulométrique est primordial. Le principal critère utilisé ici pour estimer le nombre suffisant de gouttes à atteindre pour un test est la stabilisation de l'écart-type (σ_g) du diamètre moyen (d_{10}) (voir la figure II.9).

Du fait de l'importance du diamètre représentatif de l'échantillon, un second critère est employé pour estimer la population de gouttes suffisante. L'échantillon statistiquement nécessaire (n_{min}) est tiré du rapport de l'écart-type (σ_g) et du diamètre moyen (d_{10}), appelé également polydispersité ($P(d_{10})$), voir ci-dessous :

$$P(d_{10}) = \frac{\sigma_g}{d_{10}} \tag{II.12}$$

avec :

Description	Symbole	Distribution discrète
Moyenne arithmétique	d_{10} ou d_{av}	$\frac{\Sigma_{i=1}^{k} d_i\ n_i}{\Sigma_{i=1}^{k} n_i}$
Moyenne surfacique	d_s	$\left(\frac{\Sigma_{i=1}^{k} d_i^2\ n_i}{\Sigma_{i=1}^{k} n_i}\right)^{1/2}$
Moyenne volumique	d_v	$\left(\frac{\Sigma_{i=1}^{k} d_i^3\ n_i}{\Sigma_{i=1}^{k} n_i}\right)^{1/3}$
Moyenne linéique	d_{21}	$\frac{\Sigma_{i=1}^{k} d_i^2\ n_i}{\Sigma_{i=1}^{k} d_i n_i}$
Moyenne volume-diamètre	d_{31}	$\left(\frac{\Sigma_{i=1}^{k} d_i^3\ n_i}{\Sigma_{i=1}^{k} d_i n_i}\right)^{1/2}$
Diamètre de Sauter	d_{32}	$\frac{\Sigma_{i=1}^{k} d_i^3\ n_i}{\Sigma_{i=1}^{k} d_i^2\ n_i}$
Moyenne de De Brouckere	d_{vm} ou d_{wm}	$\frac{\Sigma_{i=1}^{k} d_i^4\ n_i}{\Sigma_{i=1}^{k} d_i^3 n_i}$
Inverse de la moyenne des diamètres inverses	$d_{1/d}$	$\left(\frac{\Sigma_{i=1}^{k} d_i^{-1}\ n_i}{\Sigma_{i=1}^{k} n_i}\right)^{-1}$

TAB. II.3: Les expressions des différents diamètres caractérisant les émulsions [Pena, 2003].

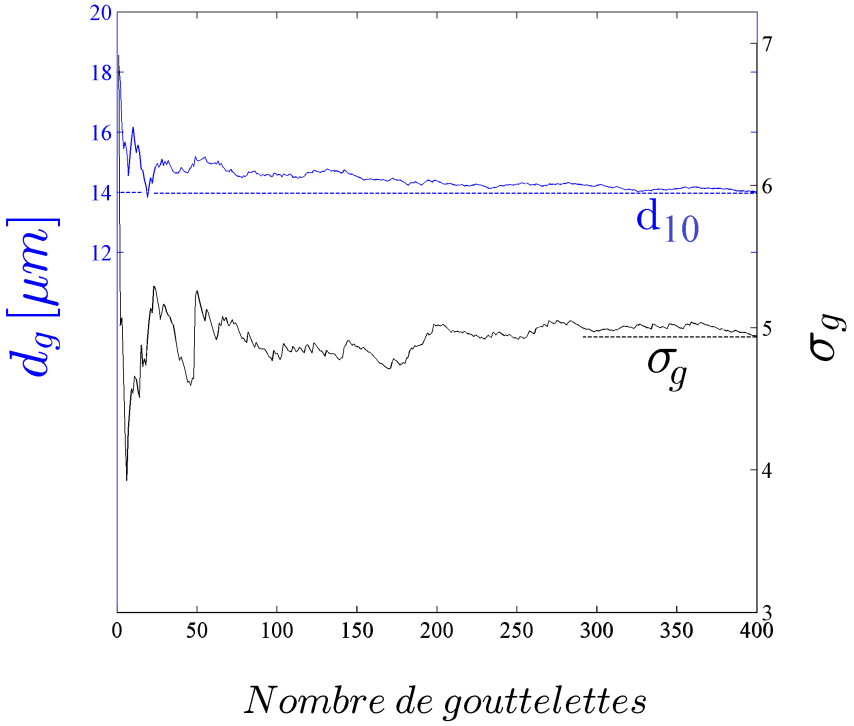


FIG. II.9: Test d'arrêt de l'analyse granulométrique.

- d_{10} : moyenne arithmétique des gouttes (voir le tableau II.3),
- σ_g : étant l'écart type.

L'échantillon statistiquement nécessaire (n_{min}) peut alors écrit sous la forme suivante :

$$n_{min} = \left(\frac{P(d_{10})\ u(1-\alpha/2)}{G_I}\right)^2 \tag{II.13}$$

avec :

– G_I : est la gamme de l'incertitude consentie,

– α : le quantile de l'échantillon de gouttelettes qui permet de partager l'étendue des valeurs de diamètres en α sous-ensembles d'effectifs égaux, de plus α est compris entre 0 et 1.

Dans l'ensemble des résultats présentés pour le travail d'émulsification via les micro-canaux, on choisit une incertitude de 10 % c'est-à-dire que G_I = 0,1. L'étendue de l'échantillon est réparti en sous-ensembles d'une largeur de 2,5 %, c'est à dire α = 0,025. Pour cette valeur du quartile (α = 0,025) les tables de la loi normale de distribution permet de donner une valeur au terme $u(1 - \alpha/2)$ égale à 2,58.

La taille minimale de l'échantillon nécessaire sera exprimée comme suit :

$$n_{min} = (25,8 \, . \, P(d_{10}))^2 \tag{II.14}$$

La granulométrie d'une émulsion renseigne sur la qualité de la dispersion, il existe un autre paramètre tout autant important pour évaluer la qualité de la dispersion. D'après [Leal-Calderon *et al.*, 2007] dans le cas de procédés favorisant la dispersion des dimensions de gouttes, la polydispersité est un paramètre employé afin d'évaluer la distribution des diamètres des gouttes autour d'une valeur moyenne "d_{10}".

[Mabille *et al.*, 2003] ont réussi à établir la relation entre le rapport des viscosités "p = μ_d/μ_c" et la dispersion de la granulométrie de l'émulsion "P(d_{10})". L'émulsion employée est une dispersion d'huile silicone (μ_h = 250 Pa.s) dans une phase aqueuse contenant 3% en masse d'un mélange d'émulsifiants (du $C_{10}E_5$ et du $C_{12}E_5$ désignée par Ifralan 205) et 97 % d'eau. Un émulsion brute polydispersée est produite, laquelle est ensuite soumise à un cisaillement afin d'en affiner les gouttelettes dispersées.

Ainsi, la ligne en pointillés représentée sur la figure II.10 représente la limite entre émulsions polydisperses et émulsions mono-disperses. Cette courbe est obtenue en faisant varier uniquement la viscosité de la phase dispersée μ_d.

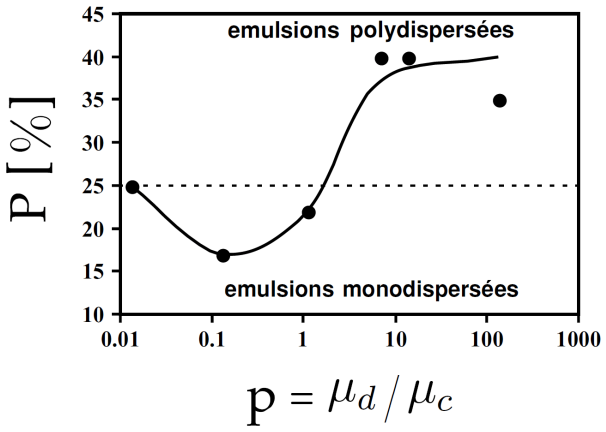


FIG. II.10: Effet du rapport des viscosités p sur la polydispersité de l'émulsion P [Mabille *et al.*, 2003].

⚠

Par exemple, on utilise une huile de tournesol commerciale en guise de phase continue (μ_c = 52, 2.10^{-3} Pa.s à 25°C) et de l'eau du robinet en guise de phase dispersée (μ_d = 0, 91.10^{-3} Pa.s à 25°C). Le rapport des viscosités entre les deux phases est alors de : p = μ_d/μ_c = 1,74.10^{-2}. En se référant au graphe II.10 ([Mabille *et al.*, 2003]) l'émulsion devrait avoir une granulométrie mono-dispersée. L'émulsion de type eau/huile résultant du procédé étudié ici, affiche contrairement à la courbe une granulométrie polydisperse.

II.4 Mécanismes de fractionnement liquide-liquide

Les écoulements multiphasiques et plus spécifiquement diphasiques, sont des milieux idéaux en vue du fractionnement. Les fluides qui intéressent cette étude sont composés de deux phases, une phase continue et une autre dispersée sous forme de gouttes.

La déformation des gouttes en présence d'un écoulement précède leur rupture. Par conséquent, il est pertinent de s'intéresser aux mécanismes responsables de la déformation des gouttes au sein d'un écoulement. Dans la littérature traitant de dispersions liquide-liquide dans le micro-systèmes, le régime d'écoulement laminaire est très largement mise en œuvre et étudié.

Un écoulement de nature laminaire est caractérisé par un nombre de Reynolds (Re = $\frac{\rho\, v\, D_H}{\mu}$) faible. Dans un écoulement confiné dans une conduite circulaire l'écoulement laminaire est dé-

finit Pour Re < 2300 pour une rugosité nulle de la conduite. Au sein de ce régime d'écoulement et en fonction de la configuration d'écoulement, diverses combinaisons de ces composantes peuvent être observées : un écoulement rotationnel, un écoulement purement élongationnel et un écoulement cisaillant. Alors on peut aisément figurer les gouttes d'une émulsion entrainée dans un tel écoulement, elles seront en proie à une rotation en masse sans déformation, à une déformation par élongation voire même à un cisaillement (voir la figure II.11) [Lemenand, 2002]

En écoulement laminaire, [Grace, 1982] publie que le fractionnement d'une goutte, est basé sur un équilibre des forces qui agissent sur une seule goutte d'un liquide immiscible (dispersion liquide/liquide) dans un écoulement liquide continu. Ces forces au nombre de trois sont :

- Les contraintes d'écoulement visqueuses extérieures qui tendent à déformer la goutte. Dans un écoulement cisaillant pur, la contrainte d'écoulement visqueuse peut s'écrire : $\tau = \mu_c \dot{\gamma}$;
- Les forces inter-faciales ou capillaires qui ont tendance à s'opposer à une déformation et à conserver la forme sphérique d'une goutte de diamètre d_g ;
- Les forces visqueuses internes qui opposent une résistance à la déformation [Habchi *et al.*, 2009].

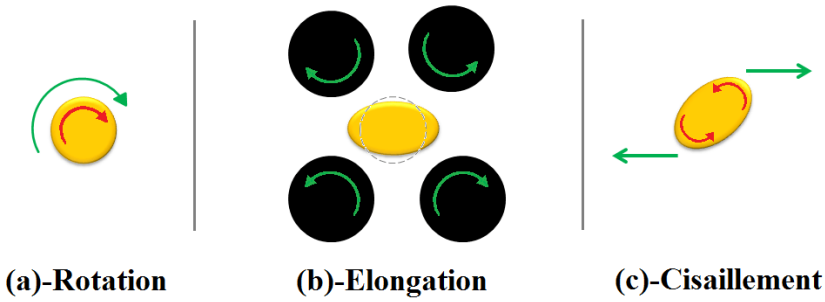


FIG. II.11: Les trois contraintes induites par un écoulement laminaire [Lemenand, 2002].

Avant d'investiguer plus en détail le fractionnement liquide-liquide, une revue des nombres adimensionnels, fréquemment employés dans les écoulements diphasiques en micro-fluidique, est nécessaire. Les écoulements diphasiques mis en œuvre dans les micro-systèmes offrent certains avantages, à savoir : une plus grande surface inter-faciale (offrant une grande surface d'échange de matière), des distances de transfert raccourcies et un mélange amélioré grâce à des géométries d'écoulements optimisées. Ces avantages peuvent réduire les limitations de transfert de masse [Zhao et Middelberg, 2011].

II.4.1 Les nombres adimensionnels

Les propriétés des écoulements diphasiques dans les micro-canaux reposent sur trois catégories de paramètres : la géométrie du canal, les propriétés des deux fluides, et les conditions d'écoulement. Des nombres adimensionnels importants permettent de prendre en compte l'importance de ces paramètres [Zhao et Middelberg, 2011].

a) Le nombre de Reynolds

Le nombre de Reynolds, définit par son expression Re = $\frac{\rho\, v\, D_H}{\mu}$, est de loin le plus employé et le plus important en mécanique des fluides pour caractériser un régime d'écoulement monophasique. Mis en évidence en 1883 par Osborne Reynolds [Rott, 1990]. Dans le travail présent, il est adapté pour être employé dans écoulements diphasiques (dispersions). Ainsi, le nombre de Reynolds appliqué aux émulsions en écoulement permet de décrire l'importance relative des forces d'inertie ($\rho_d\ v_m^2\ S_{emul}$) opposées par la phase dispersée et les forces visqueuses appliquées par la phase continue ($\frac{\mu_c\, v_m}{d_{goutte}}\ S_{emul}$) et possède pour expression :

$$Re = \frac{\rho_d\ v_m\ d_g}{\mu_c} \tag{II.15}$$

Avec :

- D_H : diamètre hydraulique du canal d'écoulement [m],
- ρ : masse volumique du fluide,
- v : vitesse du fluide [m/s],
- μ : viscosité dynamique du fluide [Pa.s],
- ρ_d : masse volumique de la phase dispersée [kg/m^3],
- v_m : vitesse moyenne de l'émulsion en sortie, avec v_m = $\frac{Q_e+Q_h}{2\ S_h}$ [m/s],
- S_{emul} : section de passage du canal d'émulsion [m^2],
- d_g : longueur caractéristique qui représente ici le diamètre caractéristique de goutte de l'émulsion [m],
- μ_c : viscosité de la phase continue [Pa.s],

b) Le nombre Capillaire

La définition du nombre capillaire est adaptée présentement à un fractionnement de gouttes dispersées dans une phase continue. Cette dernière, par son écoulement, est responsable de ce

fractionnement. Ainsi, le nombre capillaire est le rapport entre les forces de cisaillement générées dans l'écoulement et déformant les gouttes et des forces inter-faciales, représentées par la pression de Laplace, qui ont tendance à conserver la forme sphérique des gouttes. D'après [Muller-Fischer *et al.*, 2008], l'équilibre des contraintes générées dans un champ d'écoulement, qui déforment une goutte, et les contraintes de la tension inter-faciale, qui résistent à la force de déformation, est donnée par l'expression :

$$Ca = \frac{\mu_c \, v_m}{\gamma_{e/h}} \tag{II.16}$$

Avec :

- μ_c : la viscosité de la phase continue [Pa.s],
- v_m : la vitesse moyenne de l'émulsion en sortie, avec $v_m = \frac{Q_e + Q_h}{2 \, S_h}$ [m/s],
- $\gamma_{e/h}$: la tension inter-faciale [N/m].

c) Le nombre d'Ohnesorge

D'après [Zhao et Middelberg, 2011], le nombre d'Ohnesorge représente le rapport des forces visqueuses ($\frac{\mu_c \, v_m}{d_{goutte}} \; S_{emul}$) sur les forces inertielles ($\rho_d \; v_m^2 \; S_{emul}$) et les force inter-faciales ($4 \; \pi \; d_{goutte} \; \gamma_{e/h}$). Il est calculé à partir de la racine carrée du rapport du nombre Capillaire et du nombre de Reynolds.

$$Oh = \sqrt{\frac{Ca}{Re}} = \sqrt{\frac{\mu_c}{\rho_d \, d_{goutte} \, \gamma_{e/h}}} \tag{II.17}$$

Avec :

- μ_c : la viscosité de la phase continue [Pa.s],
- ρ_d : la masse volumique de la phase dispersée [kg/m^3],
- d_{goutte} : le diamètre caractéristique de l'émulsion [m],
- $\gamma_{e/h}$: la tension inter-faciale [N/m].

En d'autres mots, le nombre d'Ohnesorge caractérise simultanément la déformation et le transport (advection) imposé par la phase continue sur les gouttes de phase dispersée.

II.4.2 La surpression de Young-Laplace

On répertorie deux méthodes pouvant démontrer la validité de l'équation Young[2] - Laplace [3]. La première méthode dite mécanique, basée sur une interprétation énergétique (un travail dépensé rapporté à une surface créée). La seconde méthode s'appuie sur les principes fondamentaux de la thermodynamique [H.J. Butt, 2003, J. Pellicer, 2000].

Il est tout à fait reconnu que pour produire une augmentation infinitésimale d'un élément de surface ($\delta\Sigma$) appartenant à une surface liquide-vapeur ou liquide-liquide, tout en gardant constant la température et le volume de l'ensemble du système, une énergie infinitésimale dW et réversible est nécessaire pour générer une surface "fraiche".

$$\delta W = -\gamma_{e/h}\,\delta\Sigma \tag{II.18}$$

avec :

- δW : élément de travail infinitésimal [J],
- $\gamma_{e/h}$: la tension de surface [N/m] ou [J/m^2],
- $\delta\Sigma$: augmentation de surface infinitésimal, avec $d\Sigma = 8\,\pi\,r\,dr$ [m^2],
- r : le rayon de courbure de l'interface liquide-vapeur ou liquide-liquide [m].

N.B : Pour toutes les équations, nous avons choisi d'exprimer la tension de surface par la notation suivante $\gamma_{e/h}$. Cette notation indique simplement la tension de surface à l'interface eau-huile en rapport direct avec le sujet traité ici présent.

La tension de surface ($\gamma_{e/h}$) est toujours positive et ne dépend que de la température. La dimension physique de ($\gamma_{e/h}$) représente une énergie par unité de surface ou encore une force par unité de longueur. Il est utile de souligner l'utilisation de la notation δW pour indiquer que le travail n'est pas une différentielle totale. Le fait qu'un travail soit nécessaire pour augmenter l'aire à l'interface traduit l'existence d'une différence de pression entre les deux cotés d'une surface courbe. La valeur de la différence de pression existant de part et d'autre de la surface sphérique a été déduite en 1805 de façon indépendante par Thomas Young (1773-1829) et par Pierre Simon de Laplace (1749-1827) [J. Pellicer, 2000] et qui donnée par :

$$p_{int} - p_{ext} = \frac{2\,\gamma}{r} \tag{II.19}$$

[2]Thomas Young, 1773-1829 : Médecin et physicien Anglais, professeur à Cambridge.
[3]Pierre-Simon Laplace, Marquis de Laplace, 1749-1827 : Naturaliste Français.

La formule généralisée de cette équation adopte la forme suivante :

$$P_{int} - P_{ext} = \gamma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) \tag{II.20}$$

avec :

- γ : la tension de surface [N/m] ou [J/m^2],
- $\delta\Sigma$: élément de surface infinitésimal [m^2],
- P_{int} : la pression à l'intérieur de la goutte [Pa],
- P_{ext} : la pression à l'extérieur de la goutte [Pa]
- R_1 et R_2 : rayons de courbure de la goutte [m].

II.4.3 Fractionnement de gouttes en régime laminaire

Selon [Grace, 1982, Habchi *et al.*, 2009], au sein d'une dispersion de liquides immiscibles, l'ordre de grandeur de la taille maximale des gouttes produites peut souvent être déduite de la valeur critique du nombre capillaire. Ce dernier, représente le rapport des forces d'inertie sur les forces capillaires. Dans le cas d'un **champ de cisaillement pur**, le nombre capillaire prendra la forme suivante :

$$Ca = \frac{d_{goutte}\ \tau}{2\ \gamma_{e/h}} \tag{II.21}$$

Avec :

- d_{goutte} : est le diamètre de la goutte du fluide dispersé $[m]$,
- τ : contrainte de cisaillement [Pa],
- $\gamma_{e/h}$: la tension inter-faciale [N/m].

Pour un régime d'écoulement laminaire, la contrainte de déformation visqueuse (τ) agissant sur la surface des gouttes de l'émulsion est générée proportionnellement au taux de cisaillement ($\dot{\gamma}$) et au taux d'élongation ($\dot{\varepsilon}$) et de la viscosité associée de la phase fluide continue (μ_c) [Windhab *et al.*, 2005]. Dans ce cas le **nombre capillaire** s'écrit :

$$Ca = \frac{d_{goutte}\ \mu_c\ G}{2\ \gamma_{e/h}} \tag{II.22}$$

Avec :

- d_{goutte} : est le diamètre de la goutte du fluide dispersé $[m]$,

– μ_c : la viscosité de la phase continue [Pa.s],

– G : étant le taux de déformation dans un champ d'écoulement laminaire tel que : $G = |\dot{\gamma}| + |\dot{\varepsilon}|$,

– $\dot{\gamma}$: étant le taux de cisaillement $[s^{-1}]$

– $\dot{\varepsilon}$: le taux d'élongation $[m]$,

– $\gamma_{e/h}$: la tension inter-faciale [N/m].

[Habchi *et al.*, 2009] en déduisent la valeur du diamètre maximum pouvant résister à **une contrainte de cisaillement pur** τ, qui est exprimée en fonction du nombre capillaire critique Ca_{cr} :

$$d_{max} = \frac{2\,\gamma_{e/h}}{\tau}\,Ca_{cr} \tag{II.23}$$

L'étude des mécanismes de déformation et de rupture des gouttes au sein d'un écoulement laminaire est reprise par [Grace, 1982], d'après les travaux fondateur de [Taylor, 1934] sur la déformation de gouttes dans des champs d'écoulements définissables et surtout contrôlables. Parmi ces écoulements dits purs, figurent l'écoulement cisaillant simple ($\dot{\gamma}$) et l'écoulement élongationnel (hyperbolique plan, $\dot{\varepsilon}$). Pour ces deux écoulements, [Grace, 1982] a compilé la relation du nombre capillaire seuil au fractionnement des gouttes ($Ca_{critique}$) en fonction du rapport de viscosités des phases dispersées et continues (voir la figure II.12) [Taylor, 1934, Grace, 1982, Colonna et Della Valle, 2006].

Les études menées par [Taylor, 1934] et [Grace, 1982] sur le fractionnement de gouttes donnent naissance à un nombre important de travaux, à titre d'exemple [J.M.H. Janssen, 1993]. Ces études considèrent des déformations quasi-statiques de gouttes dans des systèmes dilués. Un fractionnement quasi-statique désigne un écoulement contrôlé (bien défini) appliqué à l'échelle d'une goutte grâce à des bancs d'essais dimensionnés à cet effet. La vitesse de l'écoulement est augmentée lentement de telle manière à ce que la goutte soit déformée quasi-statiquement
[Leal-Calderon *et al.*, 2007].

Le nombre capillaire effectif dans les phénomènes de dispersion laminaire dépend du nombre capillaire critique, à la fois du cisaillement simple et de l'allongement, ainsi que du rapport $\left(\frac{\dot{\varepsilon}_{max}}{\dot{\gamma}_{max}}\right)$ [Grace, 1982, Habchi *et al.*, 2009].

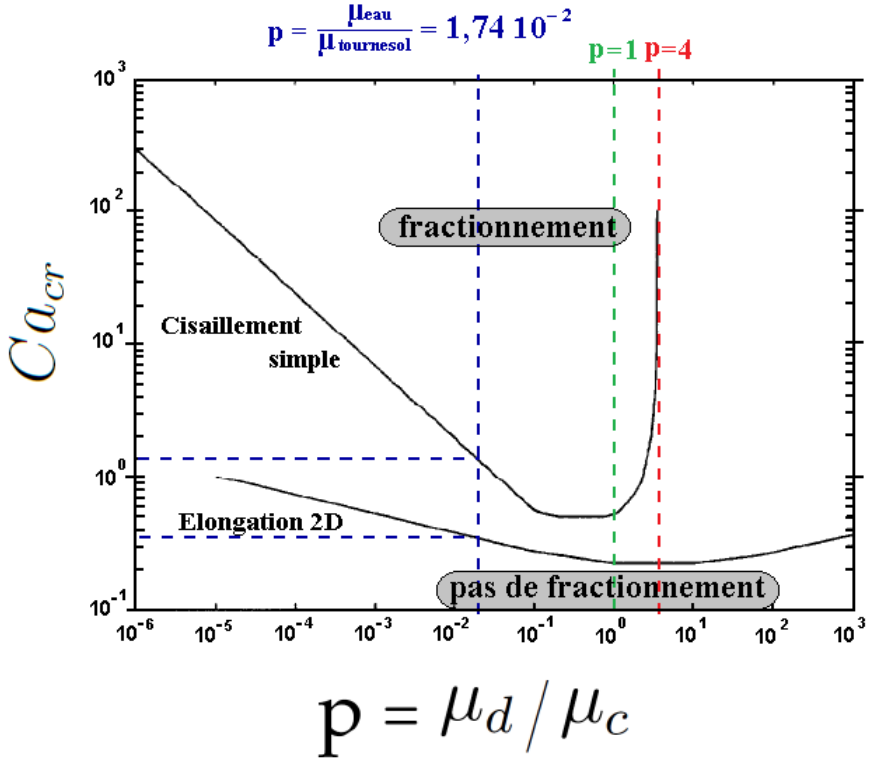


FIG. II.12: Le nombre capillaire critique pour un écoulement de cisaillement et d'élongation en conditions quasi-statiques de déformation [Grace, 1982, J.M.H. Janssen, 1993, Colonna et Della Valle, 2006].

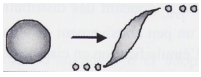
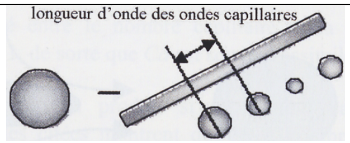
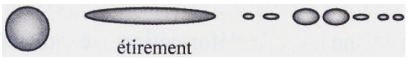
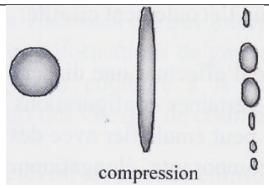
$$Ca_{cr} = (1 - \frac{\dot{\varepsilon}_{max}}{\dot{\gamma}_{max}})Ca_{cr,cisaillement} + (\frac{\dot{\varepsilon}_{max}}{\dot{\gamma}_{max}})Ca_{cr,elongation} \quad \text{(II.24)}$$

Le tableau II.4, [Colonna et Della Valle, 2006] illustre le devenir de gouttes entrainées dans les deux types d'écoulements représentés sur la figure II.12 (cisaillement pur et élongation en plan), le tout en fonction du rapport des viscosités $p = \mu_d/\mu_c$.

⚠

En présence d'eau dispersée dans de l'huile de tournesol, le rapport des viscosités sera de $p = \mu_d/\mu_c = 1,74.10^{-2}$. A partir de cette figure II.12 on obtient un $Ca_{cr,cisaillement}$ = 1,5 et $Ca_{cr,elongation}$ = 0,35, ce qui permet d'écrire l'équation II.24 sous la forme suivante : $Ca_{cr} = -1,15\ \frac{\dot{\varepsilon}_{max}}{\dot{\gamma}_{max}} + 1,5$.

Pour un rapport des viscosités $p = \mu_d/\mu_c = 1,74.10^{-2} <$ 0,02 et d'après le tableau II.4, on est à la frontière du mode de rupture en cisaillement de type Tipstreaming qui nécessite un Ca_{crit} grand. Cela concorde avec le procédé développé dans cette étude qui fonctionne dans une gamme de nombre capillaire très important.

Mode de rupture en cisaillement				
Config.				
Nom	Tipstreaming	Rupture binaire	Domaine monodisperse	Rupture impossible
$p = \mu_d/\mu_c$	$p < 0{,}02$	$0{,}02 < p < 1$	$1 < p < 4$	$p > 4$
Ca_{crit}	Grand	Petit	Petit	Infini
Mode de rupture en élongation				
Config.				
Nom	Étirement		Compression	
$p = \mu_d/\mu_c$	Quelconque		Quelconque	
Ca_{crit}	Petit à moyen			

TAB. II.4: Déformations et ruptures de gouttes en régime laminaire [Colonna et Della Valle, 2006].

II.5 Les systèmes mécaniques de production d'émulsions

Il existe une large variété de systèmes permettant l'émulsification la figure figure II.13 permet de recenser quelques un : systèmes rotor-stator, homogénéisateurs haute pression, systèmes à micro-pores et systèmes à ultrasons [H.Ã. Schubert, 2004].

Les systèmes à rotor-stator sont capables de produire des émulsions à la fois en mode continu et discontinu (voir la figure II.13-a). Les systèmes à haute pression sont utilisés uniquement en mode continu, pour produire des émulsions finement dispersées. Comme dans les systèmes rotor-stator, l'énergie mécanique demeure la force motrice pour le fractionnement de gouttes. Cependant, dans les systèmes à haute pression, la force est appliquée sous la forme d'une différence de pression. Un orifice à soupape simple comme montré dans la figure II.13-b est jugé très efficace mais également énergivore. Des émulsions finement dispersées peuvent également être produites grâce aux ultrasons (voir la figure II.13-c). Jusqu'à présent, la méthode à ultrasons a surtout été employée à l'échelle du laboratoire. Dans des procédés industriels continus, celle-ci posera certains problèmes notamment à cause d'une polydispersion de tailles de gouttelettes importante [H.Ã. Schubert, 2004].

Outre les procédés mentionnés ci-dessus, qui sont basés sur la déformation des gouttes, les émulsions peuvent également être produites à travers des membranes comme le montre la figure II.13-d. Dans ce cas, le passage de la phase dispersée est forcé à travers les micropores de la membrane. Les gouttelettes formées au niveau des sorties des pores sont détachées par l'écoulement parallèle de la phase continue à la surface de la membrane. L'emploi des micro-canaux pour l'émulsification est un procédé qui est apparu seulement dans les années 2000 pour la production d'émulsions mono-disperses [H.Ã. Schubert, 2004].

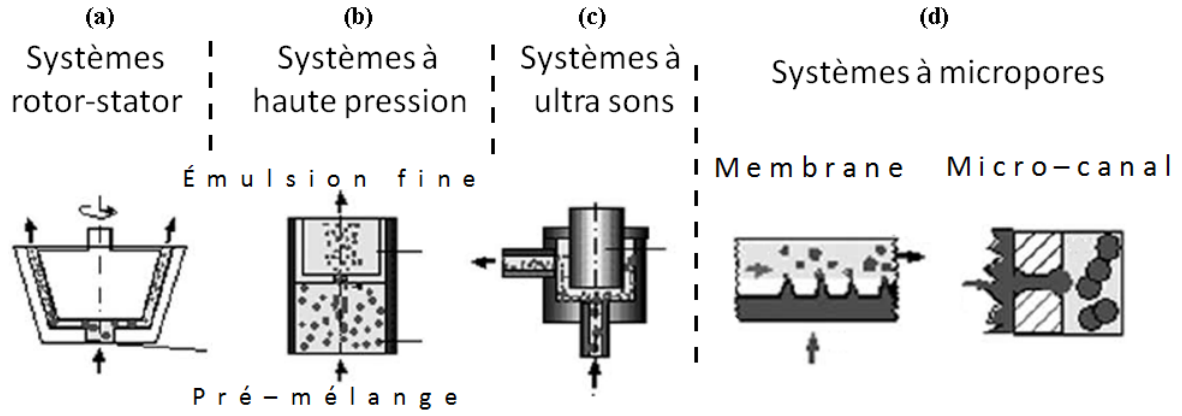


FIG. II.13: Les procédés mécaniques d'émulsification [H.Ã. Schubert, 2004].

En fonction de l'application pour laquelle se destine l'émulsion, le procédé d'émulsification permet le contrôle de production d'une dispersion plus au moins fine. Notre choix s'est porté sur les micro-canaux dont les avantages sont nombreux :

- Caractéristiques liées à l'intensification des transferts

- Caractéristiques liées à la technologie : coût de production relativement bas, facilité de production par usinage et facilité de maintenance.

La suite de ce chapitre d'état de l'art invite à s'enquérir des potentialités majeures de l'emploi des micro-canaux. La liste d'informations n'est pas exhaustive, néanmoins elle concerne la dispersion liquide-liquide via les différentes géométries répertoriées pour les micro-canaux. Les matériaux utilisés pour leur fabrication y seront également abordés et enfin on répertorie les typologies des écoulements identifiés aux seins de ces micro-dispositifs.

II.5.1 Dispersion liquide-liquide dans les micro-canaux

a) Matériaux de fabrication des micro-canaux

Il existe différentes techniques permettant la production de micro-systèmes et celles-ci sont également utilisées pour la fabrication de micro-canaux. D'après [Ghodssi et Lin, 2011] le silicium, le polymère, le métal et la céramique sont autant matériaux qui servent dans la fabrication des micro-systèmes.

Le choix du matériau de fabrication du micro-canal doit obligatoirement satisfaire à plusieurs critères : caractéristiques physicochimiques, techniques de fabrication, prix, etc. En ce qui concerne cette étude de la dispersion liquide-liquide via des micro-canaux, nous avons identifié trois contraintes majeures relativement importantes :

- Le matériau choisi doit résister à des pressions relativement importantes,
- **Un matériau doit être transparent** pour permettre des investigations optiques,
- **Un matériau doit offrir une énergie de surface adaptée,**
- **Le matériau doit pouvoir être façonné et usiné** par des techniques simples.

Pour la dispersion liquide-liquide dans les micro-canaux l'affinité de la phase dispersée avec les parois du canal doit être évitée. Dans le cas contraire, les gouttelettes sont susceptibles de s'étaler sur les parois du canal manquant de s'écouler librement. D'après Takasi Nisisako, le Polyméthacrylate de méthyle (de l'anglais Polymethyl Methacrylate : PMMA) ou Plexiglas est naturellement hydrophobe et donc avantageusement adapté aux émulsions eau dans huile (e/h) [T. Nisisako, 2002].

Les effets inter-faciaux deviennent dominants et cruciaux lorsque la longueur caractéristique c'est à dire le diamètre hydraulique (d_h) est inférieur à la longueur capillaire ($k^{-1} = \sqrt{\gamma_{e/h}/(g\,\Delta\rho)}$) [Aarts, 2005, Dreyfus *et al.*, 2003]. Contrairement aux écoulements libres, les écoulement en micro-fluidique diphasique (confinés) comprennent deux interfaces : solide-liquide et fluide-fluide [De Gennes *et al.*, 2005, Dreyfus *et al.*, 2003]. Ce caractère hydrophobe ou hydrophile d'une surface solide peut être exprimé quantitativement par l'angle de contact formé avec le fluide considéré [Xu *et al.*, 2006b] (voir annexe .1). L'angle de contact peut être ajusté par une modification de la nature de la surface, en guise d'exemple, le PDMS qui est naturellement de caractère hydrophobe devient hydrophile par une polymérisation plasma [Barbier *et al.*, 2006]. Ou encore par l'addition de tensioactifs, dans une phase. Par exemple, avec une concentration

de Sodium Dodécyl Sulfate (SDS) supérieure à la concentration micellaire critique (CMC) en phase aqueuse, la surface de PMMA à caractère hydrophobe sera plus facilement mouillée par la phase aqueuse [Xu *et al.*, 2006a, Zhao et Middelberg, 2011].

Typiquement, l'émulsion (e/h) est produite dans des dispositifs à parois hydrophobes, et l'émulsion (h/e) est générée dans les dispositifs à parois hydrophiles [Barbier *et al.*, 2006].

Pour la dispersion liquide/liquide, les matériaux à base de polymères sont très employés. Le tableau II.5 réunit les tensions de surface des polymères fréquemment utilisés. Une liste plus exhaustive est fournie en annexe .2.

Name	Tension de surface à 20°C [mN/m]
Polytetrafluoroethylene PTFE (Teflon)	20
Polyvinylchloride PVC	41,5
Polymethylmethacrylate PMMA	41,1
Polyethyleneterephthalate PET	44,6
Polydimethylsiloxane PDMS	19,8

TAB. II.5: La tension de surface des polymères fréquemment employés.

II.5.2 Les écoulements diphasiques dans les micro-canaux

La première étape dans le cycle de vie d'une goutte est sa production. La majorité des méthodes micro-fluidiques produisent des gouttes d'un volume allant de quelques femtolitres (10^{-15} L) à quelques nanolitres (10^{-9} L). Ce résultat est obtenu grâce à des techniques passives qui génèrent un écoulement uniforme, régulier et continu. Non seulement le dispositif pour la production de gouttes doit générer un flux régulier et stable de gouttes mono-disperses, mais il doit également être suffisamment contrôlable afin d'atteindre la granulométrie et la fraction de phase dispersée souhaitée [Baroud *et al.*, 2010, Zhao et Middelberg, 2011].

Des progrès significatifs ont été réalisés dans le contrôle des écoulements diphasiques au sein des systèmes micro-fluidiques. Beaucoup de recherches ont été menées afin d'étudier les conditions de fonctionnement, les propriétés des fluides ainsi que les structures des canaux affectant les écoulements multiphasiques. Une compilation de travaux de recherche en rapport avec le domaine de fractionnement liquide-liquide permet de dresser une classification unificatrice des procédés d'émulsification typiques dans les systèmes micro-fluidiques. Trois critères de classification ont été appliqués à savoir : **La géométrie du micro-canal** (géométrie de l'écou-

lement), **le mécanisme de formation des gouttes** (mécanismes de fractionnement) et enfin **la typologie de transport** de la dispersion (émulsion). Ces trois classifications sont détaillées ci-après :

a) Classification géométrique des configurations d'écoulement

- La jonction en T (T-junction)

Le fractionnement dans une géométrie en T est l'un des plus fréquemment employé pour la dispersion liquide-liquide. D'ailleurs deux modes d'écoulement ont été répertoriés à savoir :

– L'écoulement cisaillant (cross-flowing, II.14-1-b), dans lequel la phase continue est introduite par le canal horizontal et la phase dispersée s'écoule par le canal perpendiculaire. Les gouttelettes sont formées par un cisaillement transversal de cette phase dispersée appliquée par l'écoulement de la phase continue.

– "L'écoulement perpendiculaire" (perpendicular flowing, II.14-1-c), contrairement à un contre-écoulement, dans ce cas de figure la phase continue est introduite perpendiculairement à la phase dispersée qui s'écoule le long du canal horizontal.

Par rapport à l'écoulement perpendiculaire (II.14-1-c), la rupture par un écoulement transversal (II.14-1-b) produit des gouttelettes d'une gamme plus étroite en terme de taille [De Menech *et al.*, 2008, Gupta *et al.*, 2009, Zhao et Middelberg, 2011].

- L'écoulement par pincement (Flow-focusing)

Ce type d'écoulement a été proposé par [Anna *et al.*, 2003, Dreyfus *et al.*, 2003], la phase dispersée est pressée par deux écoulements de phase continue venant par les cotés, conduisant à la rupture du filet de la phase dispersée et à la formation de gouttelettes (voir (II.14-2)). Quatre régimes d'écoulement principaux peuvent être identifiés en variant les paramètres : compression (squeezing), égouttement (dripping), jaillissement (jetting), et la formation d'un filet (thread formation) [Guillot *et al.*, 2007, Guillot *et al.*, 2008, Baroud *et al.*, 2010, Zhao et Middelberg, 2011].

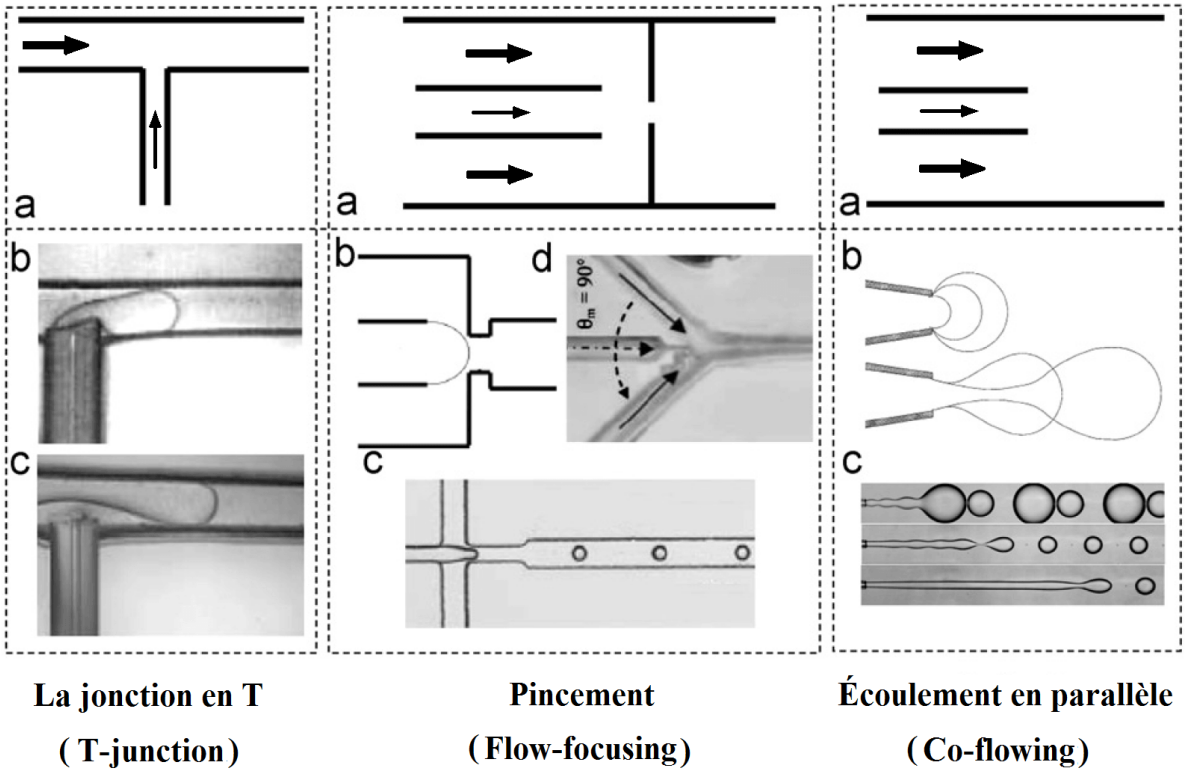


FIG. II.14: Les trois structures géométriques d'écoulements diphasique répertoriées au sein des systèmes micro-fluidiques pour la production d'émulsions [Zhao et Middelberg, 2011].

- Écoulement parallèle (Co-flowing)

Cet écoulement utilisé pour produire des gouttelettes mono-dispersées, emploie un capillaire ou une aiguille injectant la phase à disperser en co-courant directement à l'intérieur du canal d'écoulement de la phase continue (II.14-3). En faisant varier un certain nombre de paramètres physiques, les gouttelettes peuvent êtres formées soit, à l'extrémité du tube ou de l'aiguille (II.14-3-b) ou bien plus loin dans le canal principal, à la fin du filet fluide (II.14-3-c), de manière similaire aux régimes d'écoulements flow-focusing : égouttement (dripping), jet (jetting) [Anna *et al.*, 2003, Ong *et al.*, 2007, Zhao et Middelberg, 2011]. Ces mécanismes de formations de gouttes seront présentés plus en détail dans le paragraphe (§ II.4.2.(b)).

b) Mécanisme de formation des gouttes

Les mécanismes de formation de gouttes sont gouvernés par de nombreux paramètres tels que les vitesses moyennes des deux phases (v_e et v_h), leur viscosité (μ_e et μ_h) et densité (ρ_e $et \rho_h$), la tension superficielle ($\gamma_{e/h}$) et la chimie de surface et de la géométrie de dispositif [Utada *et al.*, 2007].

- Compression (Squeezing)

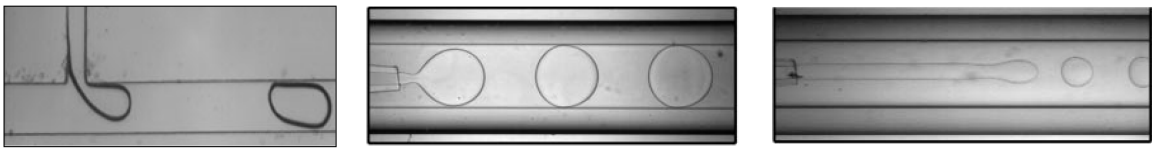
Ce régime est observé lorsque le nombre capillaire (Ca) est suffisamment faible (i.e. : les forces inter-faciales ($\pi\ d_{goutte}\ \gamma_{e/h}$) dominent), la dynamique de la rupture du fil liquide immiscible est faible ou lente par rapport à la relaxation de l'énergie inter-faciale [Garstecki *et al.*, 2005, Garstecki *et al.*, 2006].

Ce processus de fractionnement est favorisé principalement par l'accumulation de pression en amont d'une gouttelette émergente. La dynamique de la rupture et la taille des gouttelettes ne sont que très faiblement influencés par la valeur du nombre capillaire [De Menech *et al.*, 2008]. La phase ainsi dispersée s'apparente plus à des formes en bouchon qu'a des gouttes sphériques (voir la figure II.15-(a)).

- Égouttement (Dripping)

Ce régime est observé lorsque le nombre capillaire augmente, comparativement au régime Squeezing. Les gouttes sont produites directement en sortie du capillaire en Co-flowing [Utada *et al.*, 2007, Cramer *et al.*, 2004], de l'orifice en flow-focusing ou au croisement dans le T-junction.

D'après [De Menech *et al.*, 2008], le régime d'égouttement, est significativement influencé par la géométrie du micro-canal ; ces effets modifient la loi d'échelle pour la taille des gouttelettes qui est pilotée par l'équilibre des tensions inter-faciales et visqueuses (voir la figure II.15-(b)).



(a) - Compression (Squeezing) **(b) - Égouttement (Dripping)** **(c) - Jaillissement (Jetting)**

FIG. II.15: Mécanismes de formation des gouttes : (a)-Compression[Sivasamy *et al.*, 2011], (b)-Egouttement et (c)-Jaillissement [Guillot *et al.*, 2008].

- Jaillissement (Jetting)

Enfin, le régime de jaillissement (Jetting) qui est défini pour des débits très élevés, ou avec une faible tension inter-faciale, c'est à dire des valeurs plus élevées du nombre capillaire

[De Menech *et al.*, 2008].

A des débits plus élevés, le jaillissement se produit lorsque les forces d'inertie du liquide ($\rho_e\ v^2$) injecté dépassent les forces de tension de surface ($\pi\ d_{goutte}\ \gamma_{e/h}$). Les jets finissent par se fractionner en gouttes avec l'action de l'instabilité de Rayleigh-Plateau qui apparaissent à l'interface liquide-liquide [Utada *et al.*, 2007] (voir la figure II.15-(c)).

c) Configurations d'écoulement diphasiques

Le type de distribution des phases pour un écoulement diphasique est une caractéristique aussi importante. Nous sommes en présence d'écoulements de dispersions déjà formées, les différentes configurations d'écoulement recensées sont réunies sur la figure II.16.

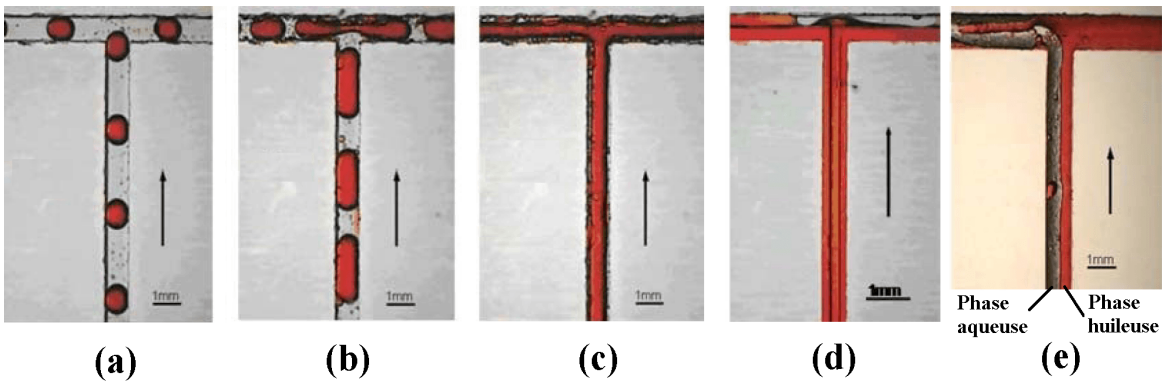


FIG. II.16: Configurations d'écoulements diphasiques : (a)-goutte, (b)-bouchon, (c)-stratifié, (d)-annulaire et (e)-semi-stratifié [Salim *et al.*, 2008].

Les trois configurations II.16(a)(écoulement en goutte), II.16(b) (écoulement en bouchon) et II.16(c) (écoulement stratifié) concernent des écoulements observés dans un micro-canal en quartz ($D_h = 787\mu m$), initialement saturé en eau. Les émulsions formées sont de type huile dans eau (h/e). Pour une vitesse superficielle de la phase continue (de l'eau dans le cas présent) fixe, le passage d'un mode à un autre est proportionnel à l'augmentation de la vitesse de la phase dispersée (huile). Les régimes d'écoulement de charriage sont tributaires de cette interdépendance des deux phases émulsionnées, chacune possédant une vitesse superficielle v_d et v_c [Salim *et al.*, 2008].

La configuration II.16(d) (écoulement annulaire) concerne un écoulement observé dans un micro-canal en verre ($D_h = 667\ \mu m$) initialement saturé en huile. Les émulsions formées sont de type eau dans huile (e/h) [Salim *et al.*, 2008].

La configuration II.16(e) (écoulement semi-stratifié) concerne un écoulement observé dans un micro-canal en verre (D_h = 667 μm) initialement saturé en eau. Les émulsions formées sont de type huile dans eau (h/e) [Salim *et al.*, 2008].

II.5.3 Les jets en impact confinés

Le premier travail initié sur l'utilisation des jets impactants dans le but de réaliser une dispersion liquide-liquide de fluides immiscibles, remonte à [Tamir et Sobhi, 1985, Kiljanski, 2004].

Les travaux cités ci-dessus reposent sur le principe d'émulsification par l'impact de deux sprays. Ces derniers sont produit par deux injecteurs disposées face à face à l'intérieur d'une même chambre [Tamir et Sobhi, 1985, Kiljanski, 2004].

Par le suite, ce principe de jets impactants est repris et appliqué dans le micro-canaux en utilisant des fluides miscibles, donnant naissance aux jets en impact confinés [Ait Mouheb, 2010, Ait Mouheb *et al.*, 2011]. Ces travaux ont ensuite largement influencé et contribué à l'emploi de fluides immiscibles, en l'occurrence de l'huile de tournesol et de l'eau pour former des émulsions eau dans huile, tout en gardant cette configuration d'écoulements de jets en impact confinés dans un micro-canal [Nedjar *et al.*, 2011, Montillet *et al.*, 2013].

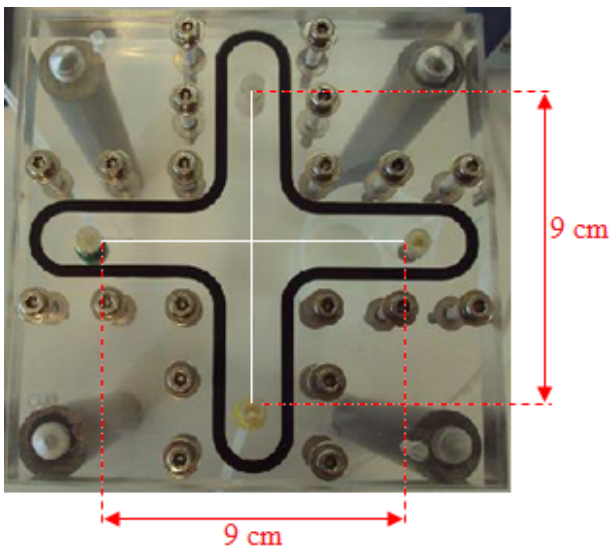


FIG. II.17: Micro-canal d'émulsification [Montillet *et al.*, 2013].

L'écoulement à jets impactants confiné, repose sur le principe de l'impact des deux fluides immiscibles au sein d'un micro-canal comme celui représenté sur la figure II.17. Les deux confi-

gurations d'écoulement expérimentées sur ce micro-canal [Montillet *et al.*, 2013] sont schématisées sur la figure II.18. On identifie distinctement un angle de 90° présent entre les quatre canaux. La configuration II.18-(A) indique un écoulement impactant avec une seule évacuation. La configuration II.18-(B) est quand à elle dotée de deux entrées et de deux sorties. Pour les deux configurations la rencontre et l'impact des deux liquides immiscibles, empruntant chacun un canal vertical, a lieu au croisement. L'émulsion produite emprunte soit un canal (A) ou bien deux canaux (B).

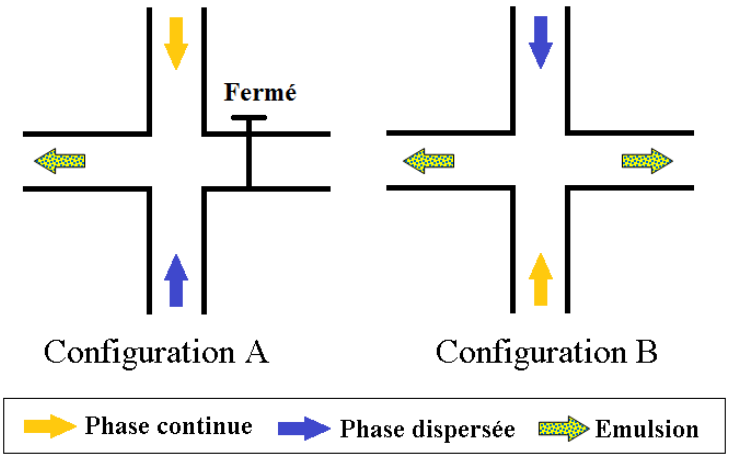


FIG. II.18: Représentation schématique des configurations expérimentées par [Montillet *et al.*, 2013].

II.5.4 Vitesses d'écoulement et diamètres représentatifs de gouttes recensés

Le domaine d'investigation expérimental relatif au présent travail a été porté sur la figure II.19. En comparaison avec d'autres études scientifiques dont sont reportés les résultats d'expérimentations, les modes de fractionnement et les géométries sont tous confondus. Le critère de comparaison de ces données se base sur l'influence du nombre Capillaire ($Ca = \frac{\mu_c \, v_c}{\gamma_{e/h}}$) et sur le diamètre représentatif des gouttes de l'émulsion "d_g".

La figure II.19 confirme les informations citées ci-avant. Les procédés énoncés dans la littérature travaillent sur des gammes de nombres Capillaires très bas (Ca < 1) et permettent d'obtenir une granulométrie qui n'est pas très fine (d > 15 μm). Les conditions de fonctionnement du procédé investigué dans cette étude couvrent le domaine représenté en rouge, avec des nombres Capillaires nettement plus élevés (3 - 14). A titre d'information, le diamètre représentatif des gouttes obtenues est quand à lui compris entre 8 μm et 50 μm. Présentement des émulsions e/h sont formées avec une phase continue (huile de tournesol) 50 à 70 fois plus

visqueuse que la phase dispersée. **Les débits appliqués à travers les micro-canaux, 70 à 100 mL/min, sont au dessus des débits habituellement mis en œuvre dans le domaine de la milli- et micro-fluidique. Les débits d'eau appliqués sont compris entre 3 et 15 mL/min. Dans de telles conditions les pertes de charges sont significativement élevées.**

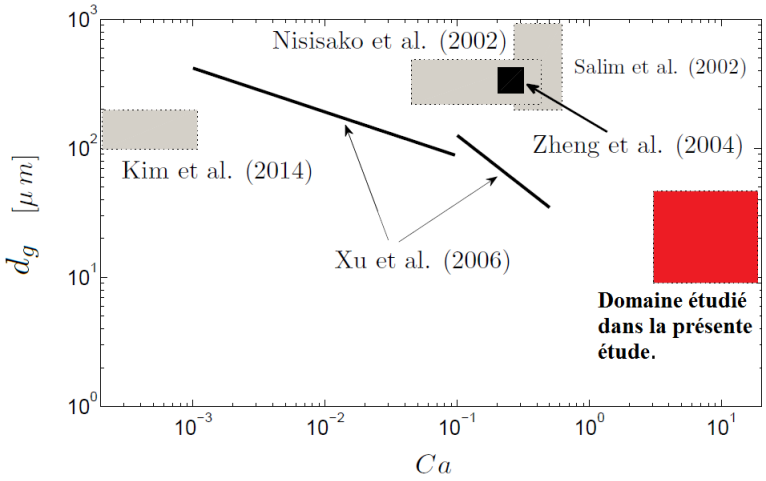


FIG. II.19: Comparaison des procédés d'émulsification en régime laminaire.

II.6 Diffusion de la lumière par des gouttes

Dans la présente partie, sera traitée l'interaction entre les ondes électromagnétiques planes et les particules sphériques en l'occurrence des gouttes liquides. En effet, la théorie électromagnétique est définie par les équations générales de Maxwell :

$$\begin{cases} Equation\ de\ Maxwell-Gauss: & \vec{\nabla} \bullet \vec{D} = \rho_F \\ Equation\ de\ Maxwell-Faraday: & \vec{\nabla} \times \vec{E} = \dfrac{\partial \vec{B}}{\partial t} \\ Equation\ de\ Maxwell-Thomson: & \vec{\nabla} \bullet \vec{B} = 0 \\ Equation\ de\ Maxwell-Ampre: & \vec{\nabla} = \vec{J}_F + \dfrac{\partial \vec{D}}{\partial t} \end{cases} \tag{II.25}$$

avec : $\vec{D}$ le vecteur déplacement électrique, $\vec{E}$ le vecteur champ magnétique, $\vec{B}$ le vecteur induction magnétique, $\vec{H}$ le vecteur champ électrique, ρ_F la densité des charges électriques, $\vec{J}_F$ la densité du courant électrique. Les champs sont liés aux excitations par :

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}, \qquad \vec{H} = \vec{B}\mu_{m0} - \vec{M} \tag{II.26}$$

Où ε_0 est la permittivité électrique et μ_{m0} la perméabilité magnétique du vide. $\vec{P}$ le vecteur de polarisabilité en volume et $\vec{M}$ le vecteur de magnétisation.

Les propriétés électriques et magnétiques sont reliées aux propriétés du milieu (supposé linéaire) par des relations constitutives simples :

$$\vec{J}_F = \sigma_e \vec{E}, \qquad \vec{B} = \mu_m \vec{H}, \qquad \vec{P} = \varepsilon_0 \chi \vec{E} \tag{II.27}$$

où σ_e est la conductivité électrique et μ_m la perméabilité magnétique et χ est la susceptibilité électrique du milieu.

La théorie de Lorenz-Mie reste une référence en granulométrie optique, car **elle résout de manière exacte** le problème de la diffusion d'une onde plane harmonique (voir la figure II.20) par une sphère homogène, isotrope, à matériel local et linéaire, placée dans un milieu environnant non absorbant (on parle de diffuseur de Mie). Cette théorie de Lorenz-Mie résulte de la résolution de l'équation d'onde en coordonnées sphériques avec une méthode de séparation de variables et des conditions aux limites reliées par les équations de Maxwell.

Rappel des relations de MIE, résultant de l'intégration des équations de Maxwell pour le champ électromagnétique intérieur et extérieur à une particule sphérique touchée par une onde plane.

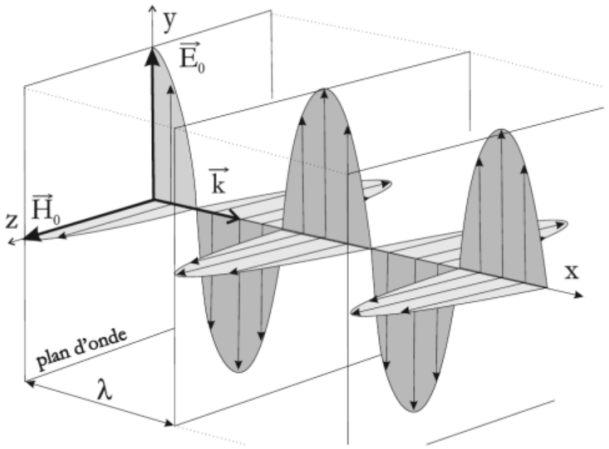


FIG. II.20: Onde plane harmonique [Boutier, 2012].

Par définition, la polarisation d'une onde électromagnétique est définie par la direction d'oscillation du champ électrique $\vec{E}$. Lorsque la direction du champ électrique est constante, la polarisation est dite linéaire ou encore rectiligne (voir la figure II.21). Il faut savoir que concrètement la polarisation d'une onde n'est jamais linéaire ou circulaire, mais plutôt elliptique [Boutier, 2012].

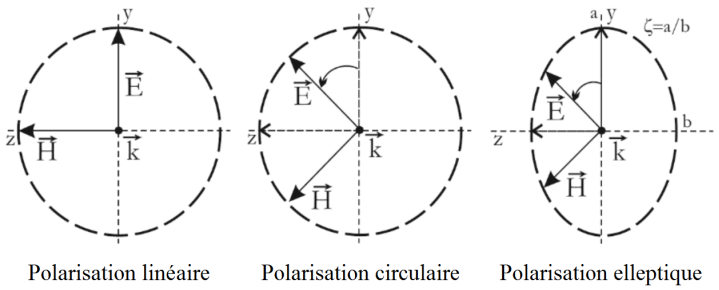


FIG. II.21: État de polarisation de la lumière [Boutier, 2012].

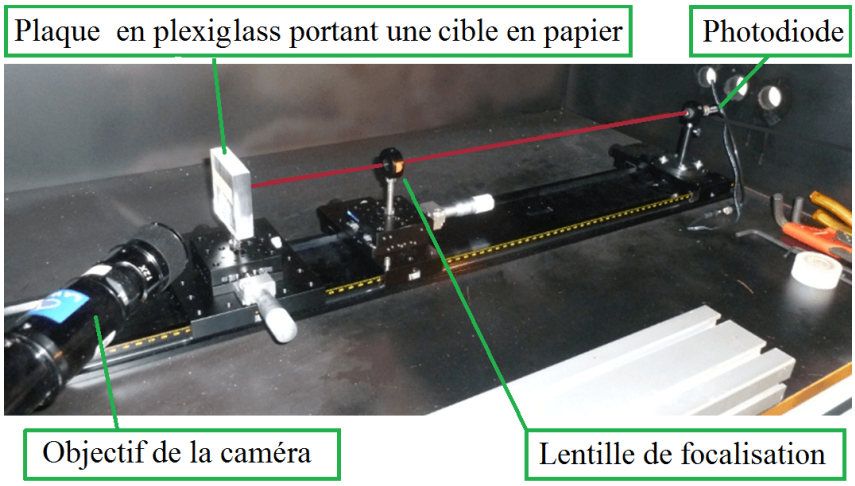


FIG. II.22: Test de polarisation de la diode laser.

⚠

Nous confirmons avoir retrouvé cette forme elliptique du rayon laser, à l'issue des essais d'extinction menés durant cette étude qui sont affichées sur la figure II.23. Ces images ont été effectuées à l'aide d'une caméra à faible fréquence d'acquisition (F_{max} = 15 Hz), sachant que le rayon émanant de la diode laser a traversé une plaque de plexiglas de 14 mm d'épaisseur.

Diffusion de la lumière par une particule isolée

Considérons en guise de diffuseur de la lumière une particule unique, dont la matière est isotrope, non magnétique et linéaire, d'indice m_1, placée dans un milieu isotrope et non absorbant d'indice m_2. L'intensité totale diffusée par cette particule est exprimée de manière très simplifiée comme suit [C.F. Bohren, 2004, Boutier, 2012] :

$$I_s = C_s \, I_0 \tag{II.28}$$

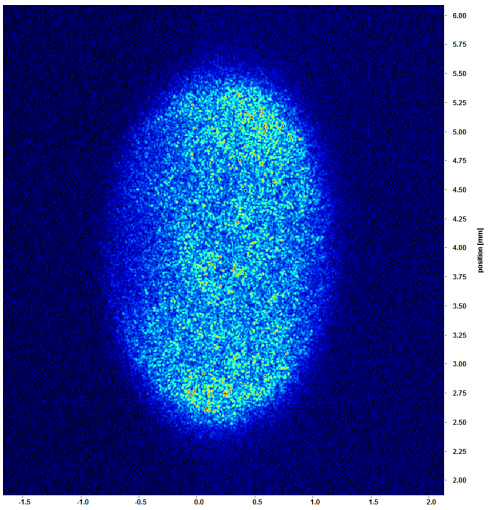


FIG. II.23: Représentation de la forme du faisceau laser.

avec : I_s étant l'intensité lumineuse diffusée, I_0 intensité lumineuse incidente et C_s étant la section efficace de diffusion.

Suivant le même principe, l'énergie de l'onde incidente qui absorbée par la particule est associée à une surface C_a et l'énergie totale éteinte, à une surface C_e. Ces surfaces sont liées par la relation suivante :

$$C_e = C_s + C_a \tag{II.29}$$

Les quantités C_e, C_s, C_a notées parfois C_{ext}, C_{sca}, C_{abs} sont appelées respectivement sections efficaces d'extinction, de diffusion et d'absorption [Boutier, 2012].

Les équations de diffusion de la lumière issues de la théorie de Lorenz-Mie, sont d'un point de vue résolution très complexes. Afin de remédier à cela deux approches sont possibles :

- la première étant une approximation de Taylor (approche ondulatoire de la lumière) : lorsque la longueur d'onde lumineuse (λ) est supérieure à la taille de la particule ou gouttelette (d_g) avec laquelle elle interagit,
- et la seconde étant une approximation géométrique (approche mécanistique de la lumière) : lorsque la longueur d'onde lumineuse (λ) est supérieure à la taille des particules ou gouttelette (d_g) avec laquelle elle interagit.

⚠

La vision mécanistique (géométrique) de la diffusion de la lumière a été adoptée pour la présente étude de l'extinction à travers les micro-canaux. Afin que les simplifications inhérentes à la vision géométrique soit applicables, les expériences d'extinction laser ont été réalisées sous certaines conditions énumérées ci-après :

- Un faisceau laser d'une longueur d'onde de 635 nm est envoyé perpendiculairement (θ=90 °)pour interagir avec des gouttelettes d'eau entre 4 et 50 μm,
- le milieu de propagation étant composé d'huile de tournesol considérée comme milieu non absorbant du moins très peu absorbant,
- les obstacles en interaction avec le faisceau laser étant des gouttelettes d'eau

Seulement dans ce cas de figure, on adopte l'approximation de la section efficace d'extinction qui sera égale uniquement à la section efficace de diffusion, c'est à dire : $\mathbf{C}_e = \mathbf{C}_s$

D'après [Massoli *et al.*, 1989], il est possible encore de procéder à une simplification de cette expression de la section efficace de diffusion (C_s) donnée par la théorie de Lorenz-Mie. Cela est applicable pour une gamme de diamètre de la gouttelette supérieur à 10 μm et pour un faisceau incident (I_0) perpendiculaire à la tangente de la surface de la gouttelette. La figure II.24 montre la variations des sections efficaces pour une polarisation du faisceau laser purement horizontale (C_{hh}) ou purement verticale (C_{vv}) en fonction du diamètre des gouttelettes, ceci pour les deux théories à savoir celle de Lorenz-Mie (trait continu) et la théorie mécanistique de la lumière (trait discontinu).

On remarque sur la figure II.24 également qu'à partir d'un diamètre de gouttelettes supérieur à 10 μm la section efficace de diffusion pour une polarisation du faisceau laser verticale (C_{vv}) s'approche jusqu'à se confondre pour les deux théories Lorenz-Mie et mécanistique. Les écarts sont nettement plus importants lorsque le faisceau est polarisé horizontalement (C_{hh}).

Pour une polarisation de la lumière exclusivement verticale les section efficace de diffusion s'écrira en fonction du diamètre de la particule ou de la gouttelette et de la longueur d'onde : $C_s = \left(\frac{\pi\, d_g}{\lambda}\right)^2$.

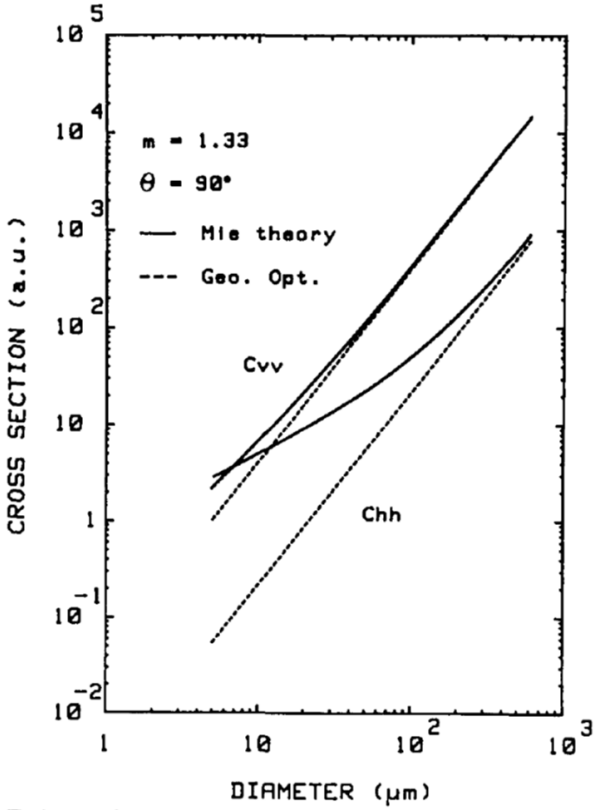


FIG. II.24: Sections efficaces de diffusion de lumière polarisée verticalement (Cvv) et horizontalement (Chh) en fonction du diamètre des particules [Massoli *et al.*, 1989].

II.7 Conclusion

Ce premier chapitre a permis de dresser un bilan concernant l'état de l'art en matière d'émulsification et de passer en revue les notions essentielles à savoir : 1 - comment se forment des émulsions, 2 - les caractéristiques mécaniques des émulsions (viscosité, granulométrie), 3 - les systèmes d'émulsification en micro-fluidique et 4 - l'interaction lumière-gouttelettes.

En utilisant le procédé à jets impactants confinés, les avantages consistent en la production d'un importante quantité d'émulsion en mode continu (émulsification en ligne). Un certain nombre de questions sont soulevées, notamment :

- *Quels sont les mécanismes qui gouvernent le fractionnement par jets impactants.*
- *Quels sont les paramètres déterminants pour l'obtention d'une granulométrie fine tout en gardant une consommation énergétique (pertes de pression) raisonnable ?*

Afin de répondre à ces questions sur un plan expérimental, la partie suivante détaille le matériel et la méthodologie expérimentale nécessaires.

Chapitre III

Matériel et Méthodes expérimentales

Sommaire

III.1 Introduction 49

III.2 Présentation du banc d'emulsification 50

III.2.1 Caractéristiques des fluides employés 50

III.2.2 Mesure de la tension inter-faciale 52

III.2.3 Mesure du débit 54

III.2.4 Mesure de la pression relative 55

III.2.5 Mesure du diamètre des gouttes 56

III.3 Mesures physiques non-intrusives 59

III.3.1 Visualisation à haute fréquence 59

III.3.2 Seconde technique d'investigation : mesure de la lumière collectée . . . 61

III.3.3 Banc d'essai optique 64

III.3.4 Calibration de la technique d'extinction laser 69

III.4 Conclusion 74

III.1 Introduction

Dans ce troisième chapitre est décrit de façon détaillée le matériel expérimental employé lors des compagnes d'émulsification. Dans un premier temps, le banc d'essai est décrit de façon globale. Par la suite, chaque fonction du matériel qui compose ce banc d'essai est détaillé et sa fonction explicitée. Toutes les grandeurs physiques mesurées sont également commentées. Les liquides et les produits employés tels les émulsifiants sont également recensés.

Un intérêt tout particulier est porté aux trois techniques de mesure et/ou de contrôle de la qualité de la dispersion à savoir : la détermination de la granulométrie, la visualisation à la caméra rapide et

technique de cartographie par extinction laser.

Enfin, Une explication de la méthode de calibration de la technique d'extinction laser à travers le micro-canal est présentée.

III.2 Présentation du banc d'emulsification

L'installation qui a été conçue afin d'étudier la production d'émulsions e/h, en utilisant les jets en impact confinés dans les micro-canaux, est représentée par la figure III.1. Cette installation est équipée de deux pompes volumétriques à double piston (ARMEN - APF-100-25-1, voir figure III.1-(d)). La pression maximale et le débit maximum de travail de ces pompes sont respectivement 25 bars et 100 mL/min (dans le cas de l'emploi de l'eau). Les puissances de pompage mesurées expérimentalement sont réunies en Annexe .5.

Afin de permettre une mesure précise du débit, le banc est équipé de deux balances Sartorius - MSE2203 permettant une acquisition de la masse pesée au cours du temps dont la précision est de $\pm 10^{-3}\ g$ (voir figure III.2 et figure III.1-(f)). La mesure de la pression est assurée par deux transmetteurs compacts de pression Gems - 3100 (voir figure III.3 et figure III.1-(c)). La gamme de mesure du capteur de pression est de 0 - 25 bars pour une précision de $\pm 0,25\%$ de la pleine échelle. Ces capteurs de pression sont raccordés à la boucle d'émulsification entre la pompe et l'entrée du micro-canal (figure III.1-(c)). Les capteurs mesurent la pression statique pour chacun des deux liquides mélangés. Comme l'émulsion produite débouche dans un bêcher, c'est-à-dire à la pression atmosphérique, la pression relevée est relative.

Toutes les connexions entre les pompes et les micro-canaux sont établies à l'aide de tubes en Fluoropolymère (FEP) dont les dimensions sont les suivantes : un diamètre intérieur (ID) de 1,55 mm et un diamètre extérieur (OD) de 3,125 mm.

III.2.1 Caractéristiques des fluides employés

Les fluides employés lors des expériences d'émulsification sont portés dans le tableau III.1. Le choix est porté sur l'huile de tournesol en guise de phase continue. Avec une viscosité à $25°C$ 52 fois supérieure à celle de l'eau utilisée, cette huile constitue un fluide modèle dont la viscosité à $25°C$ correspond à celle de déchets de consistance visqueuse mis en œuvre à $60°C$.

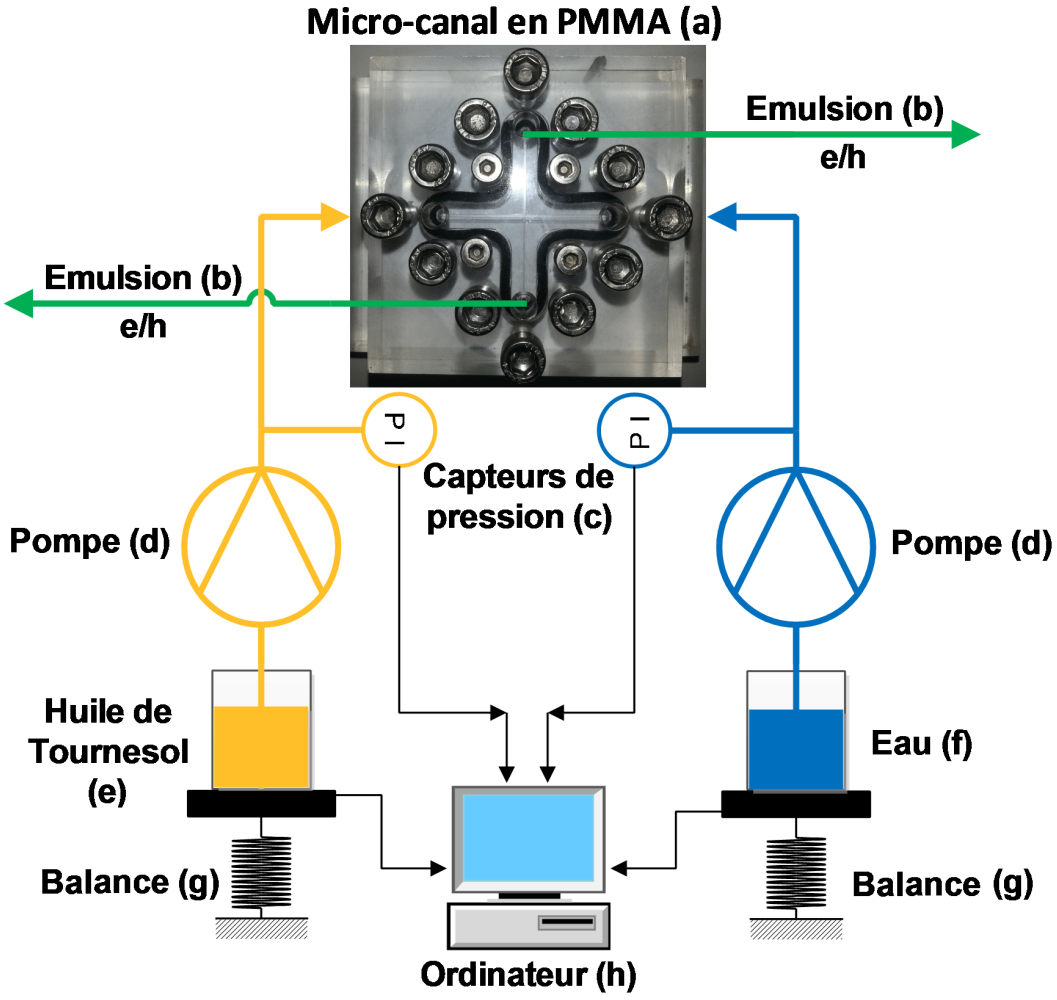


FIG. III.1: Banc d'émulsification : (a)- Micro-canal en PMMA, (b)- Émulsion eau dans huile, (c)- Capteurs de pression, (d)- Pompes à piston, (e)- Bêcher contenant l'huile de Tournesol, (f)- Bêcher contenant de l'eau, (g)- Balance, (h)- Ordinateur.

FIG. III.2: Balance Sartorius-mse2203.

FIG. III.3: Capteur de pression Gems - 3100.

L'eau employée est issue du réseau hydraulique de la ville de Nantes fournie par Nantes Métropole.

La finalité de cette étude est de produire une émulsion en l'occurrence un biodiesel émulsionné, sans ajouter d'agent tensioactif de manière à ne pas augmenter le coût du procédé ou encore éviter l'alourdissement du bilan carbone de la combustion d'un tel biodiesel émulsionné obtenu avec présence d'émulsifiant. Néanmoins nous avons été amené à rechercher des tensioactifs adaptés pour les émulsions étudiées afin d'évaluer l'effet de la tension interfaciale sur la granulométrie des émulsions produites.

Plusieurs émulsifiants de basse valeur d'HLB et principalement bio-sourcés, ont été testés à savoir le PGPR90 (HLB = 3), le Sorbitane tristearate (Span65 - HLB = 2,1) et le Sorbitane trioleate (Span83 - HLB = 3,7). L'utilisation du Span83 a donné naissance à une émulsion stable pour une granulométrie plus fine comparativement à celles obtenues avec les deux autres émulsifiants. Dans cette étude qui consiste à produire une émulsion de type eau dans huile, le Sorbitan sesquioleate (Span83), un émulsifiant non-ionique dont le valeur HLB est égale à 3,7 a été alors retenu.

III.2.2 Mesure de la tension inter-faciale

Afin de caractériser l'influence de la tension inter-faciale (pouvoir tensioactif) sur la dispersion e/h, cette force à fait l'objet de mesures en utilisant deux appareils à savoir la méthode de la lame selon Wilhelmy (KRUSS K-12, figure III.4) et la technique de la goutte pendante (KRUSS-DSA30, figure III.5).

Les résultats des mesures de la tension inter-faciale en fonction de la concentration en masse de Span83 ($[Emulsifiant]$) affichés sur la figure III.6 montrent que l'évolution de la tension

[1] $http://www.kruss.de/services/education-theory/glossary/wilhelmy-plate-method/$

Liquides at 25°C	**Eau**	**Huile de tournesol**	**Span83**	**Butan-1-ol**
Tension de surface dans l'air γ [mN/m]	73,5	33,67	-	24,6
Tension inter-faciale dans l'eau $\gamma_{e/h}$ [mN/m]	-	27,6	-	2
Viscosité dynamique μ [mPa.s]	0,91	52,2		5,88
Masse volumique ρ [g/L]	998	865	989	806
Fournisseur	Nantes métropole	Carrefour	Sigma-Aldrich	Fisher Scientific
Valeur HLB	-	-	3,7	-

TAB. III.1: Caractéristiques des fluides employés.

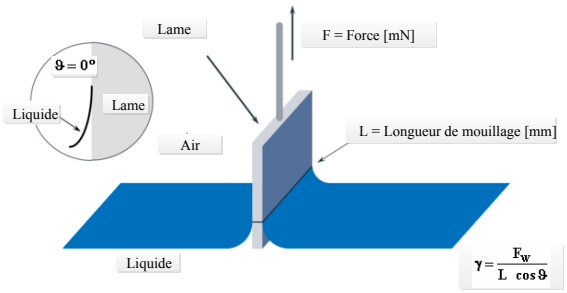


FIG. III.4: Technique de la lame selon Wilhelmy (KRUSS K-12)[1].

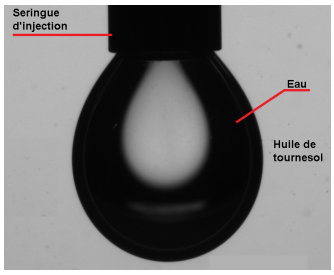


FIG. III.5: Technique de la goutte pendante eau dans huile (KRUSS-DSA30).

inter-faciale obéit à la loi de Gibbs [D.F.Evans, 1999] donnée par l'équation suivante :

$$\gamma_{e/h} = -A\, log(B\,[Emulsifiant]) \tag{III.1}$$

avec : A et B sont des constantes telles que $A = -20$ et $B = 0,8$.

L'estimation de l'erreur relative moyenne ($e_\sigma = \frac{1}{n_i}\sum_i \left|\frac{\sigma\, exp.(i) - \sigma\, theo.(i)}{\sigma\, exp.(i)}\right|$) calculée sur l'intervalle de 0 à 0,4 % en masse de concentration en Span83 est égale à 13 %. Pour la deuxième partie du segment des concentrations entre 0,6 at 1 % en masse l'erreur relative max affiche 55 %.

La figure III.7 réunit l'ensemble des points expérimentaux réalisés. On remarque que le

nuage de points suit la courbe d'équation : y = -20 log(0,8 x) dont le coefficient de corrélation (R^2) est estimé à 89 %. Deux parties se distinguent : une zone où la tension superficielle décroit en fonction de la concentration en masse de Span83, une seconde zone affiche un palier qui commence à partir d'une concentration de 1% en masse de Span83. Ce palier représente le seuil de la concentration micellaire critique (CMC) qui est évaluée à 1 % en masse de Span83.

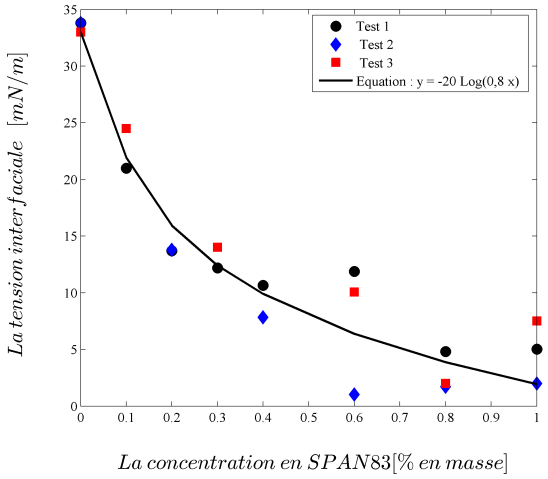


FIG. III.6: Évolution de la tension à l'interface eau/huile à T = 25 °C et une concentration de Span83 variant de 0 à 1 % en masse.

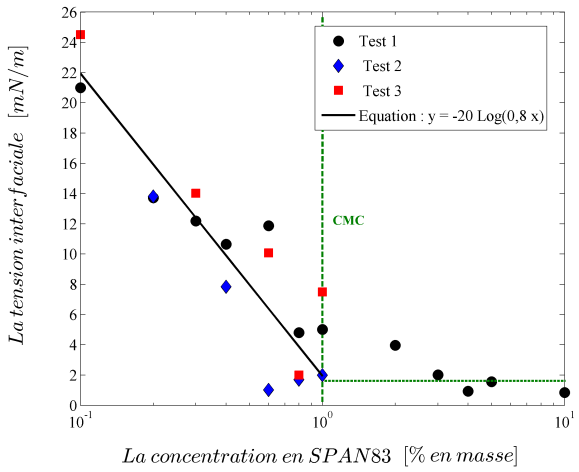


FIG. III.7: Évolution de la tension à l'interface eau-huile ($\gamma_{e/h}$) à T = 25 °C et détermination de la concentration micellaire critique (CMC).

III.2.3 Mesure du débit

Les émulsions e/h considérées dans la présente étude sont formées à partir de 80% en volume de phase continue (huile de tournesol) et de 20% d'eau. Le débit volumique est calculé simplement par un rapport au défaut de masse du liquide enregistré par la balance au cours du temps.

Les deux courbes représentés sur la figure III.8 montrent un exemple de signal enregistré lors d'une expérience d'émulsification e/h. La pente de la courbe (tan(α) ou tan(β)) représentant le débit volumique est obtenu par la formule suivante :

$$Q = \frac{1}{\rho}\frac{\Delta m}{\Delta t} \tag{III.2}$$

Avec :

– Q : débit volumique [m^3/s],

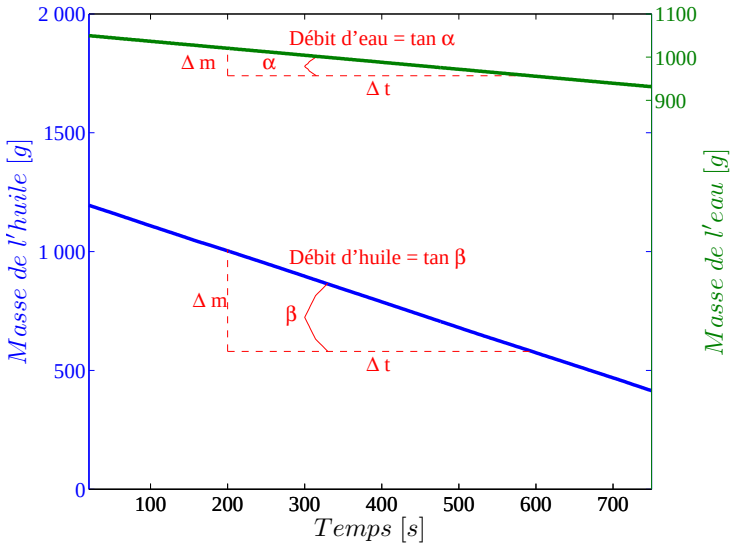


FIG. III.8: Mesure du débit.

– ρ : masse volumique du liquide pompé [kg/m^3],

– Δm : masse pompée de liquide [kg],

– Δt : Durée du pompage [s].

⚠

Dans les machines de pompage volumétriques à pistons utilisées, on est confronté à un volume de remplissage réel relativement inférieur à la consigne (théorique). Pour les expériences menées dans ce travail, la pompe travaillant avec l'huile de tournesol offre un taux de remplissage des pistons oscillant entre 65 - 90 % en volume et celle travaillant avec l'eau entre 80 - 95 % en volume.

III.2.4 Mesure de la pression relative

La pression relative est mesurée comme indiqué par deux transmetteurs compacts de pression Gems - 3100 (voir la figure III.3). Ces derniers mesurent dans la gamme de pression de 0 - 25 bars pour une précision de $\pm 0,25\%$ de la pleine échelle. Techniquement la pression enregistrée par ces capteurs est communiquée sous forme d'un courant compris dans la gamme 4 - 20 milliampères. La correspondance entre les deux gammes est alors la suivante : 4 mA correspond à 0 bar et 20 mA à 25 bars. Cette conversion est exécutée en temps réel grâce à un programme de LabView. La figure III.9 montre un exemple de signaux de pression relative enregistrés lors d'un test d'émulsification.

La pression de pompage est obtenue en moyennant le signal de pression enregistré à l'issue

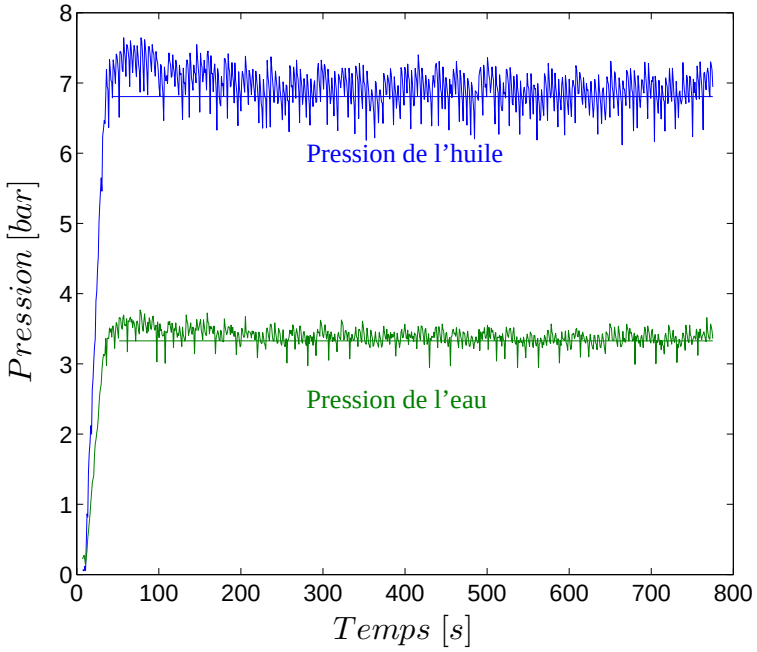


FIG. III.9: Exemple de mesure de signal de pression.

du test, tout en s'affranchissant des singularités à savoir la phase de démarrage et la phase d'arrêt.

III.2.5 Mesure du diamètre des gouttes

La technique utilisée pour la détermination de la granulométrie des émulsions obtenues par le biais du présent procédé, est la microscopie optique. Comme énoncé cette technique emploie un microscope optique Zeiss AxioImager M2 (voir figure III.10). Ce dernier permet la capture et l'enregistrement des photos des émulsions formées pour un post-traitement ultérieur.

La mesure débute en prélevant un échantillon d'émulsion à l'aide d'une pipette Pasteur en Polyethylène basse densité (VWR, Réf : 612-1688) juste en sortie du micro-système. Cet échantillon est ensuite présenté devant la cellule de numération de Neubauer améliorée (VWR, Réf : 631-1111) par dessus laquelle est disposée une lamelle en verre. Sur la figure III.11, est représenté cet espace d'une hauteur de 150 μm existant entre la partie centrale de la cellule et la lamelle. Grâce à la pipette, on dispose une goutte d'émulsion à côté de cet espace et la force de capillarité se charge de le transférer l'émulsion à l'intérieur. On procède de cette manière afin d'éviter tout écrasement des gouttes qui peuvent fausser les mesures.

L'emploi de cette cellule en verre se heurte à un phénomène physique qui est l'affinité entre

FIG. III.10: Microscope optique Zeiss Axio Imager M2.

la phase dispersée (l'eau) et le verre. Pour confirmer cette hypothèse, un test de comparaison des deux cellules d'énumération, l'une en verre et l'autre en polyméthacrylate de méthyle (PMMA), a été réalisé (figure III.11). La comparaison a été établie sur la base d'une analyse de deux échantillons prélevés d'une même émulsion préparée à cet effet.

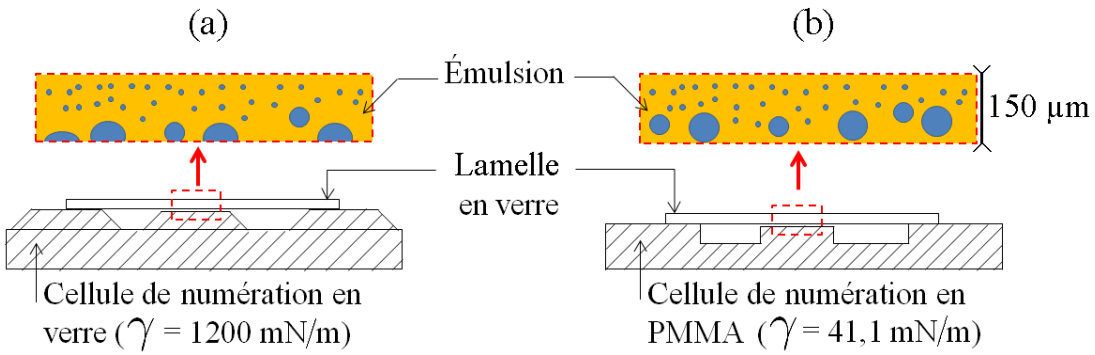


FIG. III.11: Cellules de numérations : a - cellule de Neubauer améliorée en verre, b - cellule en PMMA usinée.

⚠

Les instabilités thermodynamiques des deux échantillons d'émulsion sont écartées pour la raison suivante : les échantillons proviennent d'une même émulsion et la durée de prise d'images sous le microscope nécessite moins de 5 minutes pour chaque échantillon. Le post-traitement intervient ultérieurement.

Le résultat de l'analyse comparative de la granulométrie pour les deux échantillons est affichée graphiquement sur le figures III.13 et III.14. C'est une représentation de l'évolution du diamètre moyen d_{10} et de l'écart type σ en fonction du nombre de gouttes analysées pour

chaque échantillon. Avec $d_{10} = 13,70\ \mu m$, l'analyse granulométrique effectuée en employant la cellule en verre sous-estime le diamètre moyen de l'émulsion par rapport à l'emploi de la cellule en PMMA ($d_{10} = 17,63\ \mu m$).

L'étude granulométrique comparative des deux cellules penche en faveur de la cellule de numération en PMMA. Ceci explique l'emploi de la cellule en PMMA pour la totalité des tests de mesures granulométriques.

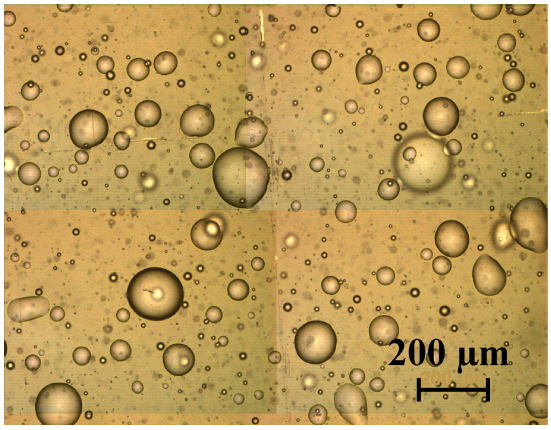


FIG. III.12: Vue sous microscope d'une émulsion sur une cellule de numération en verre.

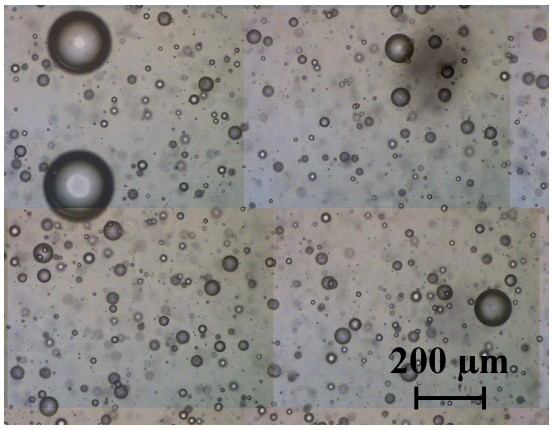


FIG. III.13: Vue sous microscope d'une émulsion sur une cellule de numération en PMMA.

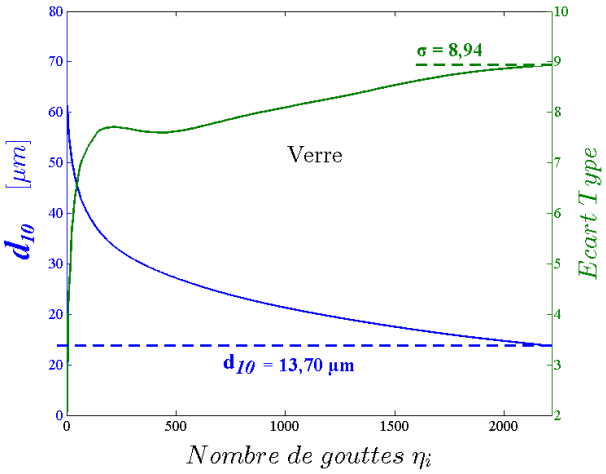


FIG. III.14: Distribution granulométrique pour la cellule de numération en verre (images reconstituées à partir de plusieurs champs).

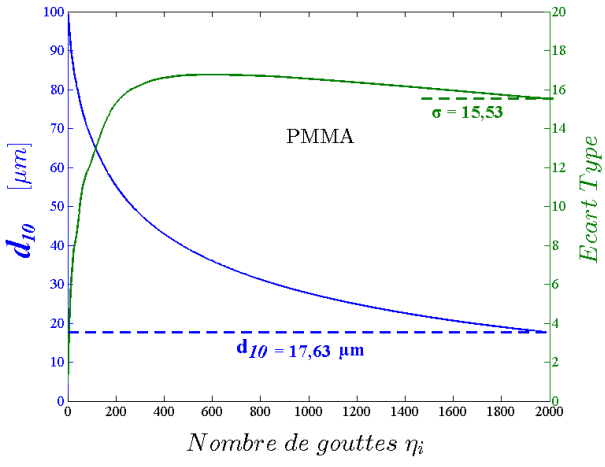


FIG. III.15: Distribution granulométrique pour la cellule de numération en PMMA (images reconstituées à partir de plusieurs champs).

En raison d'une forte mouillabilité de la cellule de numération en verre (voir la figure III.11-(a)), les gouttes d'eau sont attirées vers les parois. Ce qui explique la précipitation des grosses gouttelettes vers le fond dans l'échantillon d'émulsion analysé, comme représenté sur la figure III.11. Certaines de ces gouttelettes adhèrent complètement à la paroi du fond et cela est confirmé par une perte de sphéricité des gouttelettes observées sur la figure III.12

III.3 Mesures physiques non-intrusives

Les mesures non intrusives sont fondamentales en mécanique des fluides ceci afin d'améliorer la connaissance du comportement de l'écoulement [Boutier, 2012]. Comme énoncé dans l'introduction de ce chapitre, il est question de détailler les deux techniques employées afin de contrôler la dispersion eau dans huile (e/h).

III.3.1 Visualisation à haute fréquence

Les techniques de visualisation et l'utilisation d'enregistrement vidéo rapide sont les premiers outils de diagnostics employés classiquement pour les écoulements diphasiques [Colin et Baldas, 2004]. Au cours des dernières années l'imagerie à haute vitesse a franchi un pas en avant important pour la recherche scientifique dans le domaine des écoulements. L'amélioration de la technologie d'imagerie à haute vitesse a conduit à de nouvelles découvertes dans les mécanismes physiques sous-jacents et la phénoménologie des écoulements. Les phénomènes d'écoulement à grande vitesse et à petite échelle qui sont habituellement rencontrés en micro-fluidique nécessitent à la fois **une haute résolution spatiale et temporelle**. Pour figer le mouvement lors de l'exposition, une caméra avec un court temps d'exposition peut être utilisée ou bien une source lumineuse capable d'émettre des impulsions lumineuses de courte durée, comme un laser pulsé [Versluis, 2013].

Durant la campagne de visualisation, il est employé une caméra rapide "High Speed Star 6" du fournisseur LaVision . Cette dernière est dotée d'un capteur de type CMOS (Complementary Metal-Oxyde-Semiconductor). Le domaine d'investigation expérimental de cette caméra concerne des écoulements caractérisés par des vitesses d'écoulement compris entre 1 et 3,5 m/s. Comparativement aux procédés d'échelle micro-fluidique communément rencontrés dans la littérature scientifique (voir § II.4.2), cette gamme de vitesses justifie l'emploi d'une caméra de ce type. La définition maximale du capteur CMOS de cette caméra est de 1 Mégapixels.

Comme toute technique d'investigation expérimentale, la visualisation à haute fréquence offre des limites :

- Il faut savoir que la fréquence d'acquisition évolue en sens inverse de la qualité d'image. Ces propos sont confirmés par le tableau III.2.
- Une autre limite concerne le PMMA qui compose les micro-canaux employés. Du fait de l'emploi de la technique d'usinage, les parois des micro-canaux présentent un état de surface rugueux. Cet état de surface conduit à une faible qualité optique. Dans le cas présent, l'emploi d'huile de tournesol dont les caractéristiques optiques (indice optique de réfraction) sont très proches de ceux du PMMA a pour avantage d'éviter les effets négatifs liés aux effets d'interface huile-PMMA.

Fréquence	Résolution Max		Temps d'enregistrement	Nbre d'images
[images/s]	H [Pixels]	V [Pixels]	[secondes]	
1000	1024	1024	5,46	5 457
5400	1024	1024	1,01	5 457
10 000	768	768	0,97	9 701
15 000	768	512	0,97	14 552
20 000	512	512	1,09	21 829
Fréquence minimale : 50 Hz Fréquence maximale : 675 MHz				
Ouverture du diaphragme : 20 ms - 1 μs				
Capacité de la mémoire de la caméra : 8 Gigabytes.				

TAB. III.2: Caractéristiques de la caméra LaVision HighSpeedStar 6.

a) Banc de visualisation rapide

Durant la campagne de visualisations à haute fréquence, la caméra rapide est disposée face au micro-canal comme représenté sur la figure III.16. La source de lumière, en l'occurrence une lampe, est placée derrière le micro-canal. L'objectif employé (LaVision Réf. : 1108548) est un système de lentilles doté de 12 plages de grossissement (zoom 12x) permettant ainsi une mise au point fine (voir la table III.3).

Différentes distances entre l'objectif et le micro-canal ont été adoptées. Suivant la zone d'intérêt, la fenêtre de visualisation est variée et s'accompagne inévitablement d'une mise au point (c'est à dire le rapprochement ou de l'éloignement de cet objectif par rapport au micro-canal).

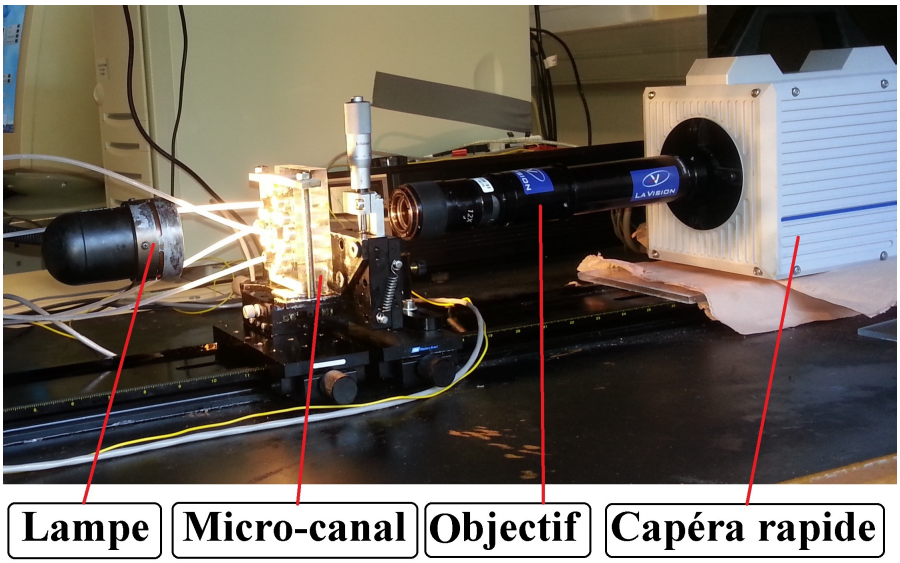


FIG. III.16: Disposition de la caméra rapide en mode de fonctionnement.

Objectif LaVision Réf : 1108548	
Résolution	0,018 - 0,1 N.A.
Distace de travail	37 - 334 mm
Champ de visualisation	0,01 mm - 83mm

TAB. III.3: Caractéristiques de l'objectif à fort grossissement 12x.

b) Synchronisation des mesures

Une synchronisation entre les différents équipements de métrologie qui équipent le banc d'émulsification (Capteurs de pression, balances) et la caméra rapide (le schéma de principe représenté par la figure III.17) a pu être réalisée. Ce montage a permis une meilleure interprétation des visualisations effectuées avec la caméra rapide.

III.3.2 Seconde technique d'investigation : mesure de la lumière collectée

Les techniques optiques basées sur les propriétés de la diffusion de lumière sont largement utilisés pour étudier les fluides diphasiques. Elles se basent sur le principe de l'interaction des ondes électromagnétiques et des particules macroscopiques [Gouesbet, 1998].

Cependant, ces techniques nécessitent la connaissance des propriétés optiques des fluides formant la dispersion [Calabria et Massoli, 2007]. La technique de diffusion de la lumière laser (extinction laser), considérée comme une mesure non-intrusive, a été employée pour cartographier l'intensité de l'extinction laser dans les flammes produit par un combustible brut et une

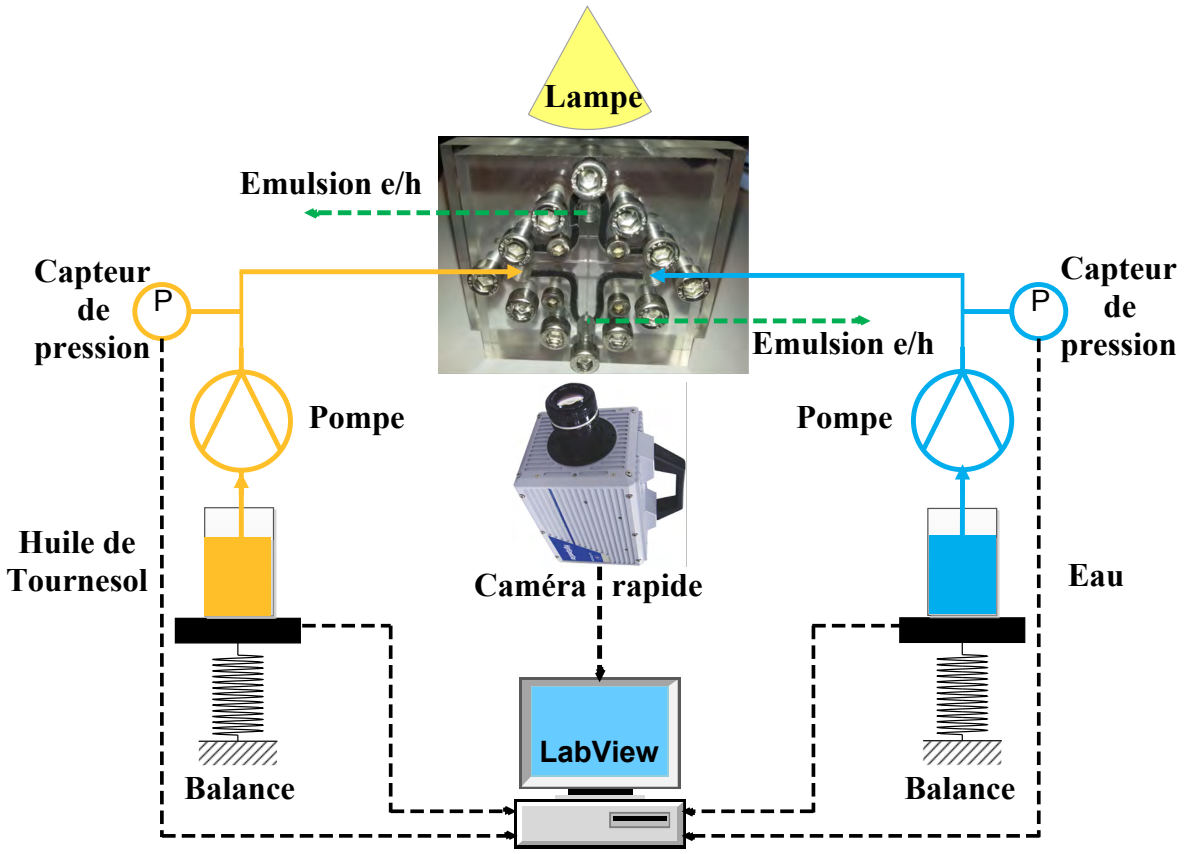


FIG. III.17: Synchronisation de la caméra rapide et des signaux de pression.

émulsion eau dans carburant [Mattiello *et al.*, 1992, Calabria *et al.*, 2009].

Dans le présent travail, cette technique est adaptée pour effectuer une cartographie, dont le maillage est de 150μm × 150μm), de la présence de phase dispersée sous forme de filaments, gouttes et gouttelettes. Cette investigation concerne le croisement du micro-canal ainsi que le canal d'évacuation de l'émulsion. L'objectif est précisément de localiser la zone d'émulsification, c'est à dire la et/ou les zones où la quantité de la lumière diffusée n'est pas spatialement constante.

a) Théorie de l'extinction laser

Les mesures par extinction laser reposent sur la propagation d'une onde lumineuse dans un milieu constitué d'huile avec des gouttelettes d'eau (émulsion) exprimée par cette formule III.3 [C.F. Bohren, 2004].

$$dI = -\alpha_{ext}\, I\, dz \tag{III.3}$$

avec :

– I : l'intensité lumineuse incidente [W/m^2],

– dz : direction de propagation de l'onde [m]

– α_{ext} : coefficient d'atténuation [m^{-1}] qui intègre la densité d'obstacles optiques (particules, gouttes) rencontrés par la trajectoire du faisceau.

En l'absence d'une forte densité d'obstacles optiques la diffusion multiple (multiple scattering) est écartée, ce qui permet d'intégrer la propagation suivant "z" pour obtenir :

$$I_t = I_0 \, e^{-\alpha_{ext} \, h} \tag{III.4}$$

Avec :

– h : étant l'épaisseur du milieu traversé par le faisceau [m],

– I_t : l'intensité lumineuse transmise [W/m^2],

– I_0 : l'intensité lumineuse incidente [W/m^2].

La présence de ces gouttes introduit la notion de section efficace de diffusion (C_{sca}) du fait de leurs interactions avec l'onde électromagnétique du laser. Ce coefficient d'atténuation est une fonction III.5 du nombre de gouttelettes par mètre cube et de leur section efficace de diffusion C_{sca} [Melling, 1997, F. Shahrokhi, 1968].

$$\begin{cases} \eta = \frac{V_e}{V_s} \\ \alpha_{ext} = \Sigma_i \, \eta_i \, C_{sca,i} \end{cases} \tag{III.5}$$

L'équation III.5 tient compte de la distribution de taille de gouttelettes. Un échantillon d'une centaine de gouttelettes qui totalise un volume "Vs" est considéré comme statistiquement représentatif de l'ensemble du volume d'eau "Ve" contenu dans 1m^3 d'émulsion. En d'autres termes, chaque gouttelette "i" est considérée comme présente "η" fois dans toute la quantité d'eau. Dans ce cas "η_i" est le nombre de gouttelettes ayant une section de diffusion "$C_{sca,i}$" par mètre cube d'émulsion.

La section efficace de diffusion de la gouttelette d'eau contenue dans l'huile est fonction du diamètre des gouttelettes au carré d_g. Pour une fraction d'eau dans l'émulsion φ_e donnée, le nombre total des gouttelettes est inversement proportionnel au volume moyen de la gouttelette ($\eta = \varphi_e \, / \, \frac{4}{3}\pi \frac{d_g}{2}^3$), soit inversement proportionnelle au diamètre des gouttelettes à la puissance trois. Ainsi, l'extinction totale, donnée par la concentration que multiplie la section efficace de

diffusion est inversement proportionnel au diamètre des gouttelettes "d_g". La tendance générale de la technique de diffusion de la lumière est expliquée par [Mattiello *et al.*, 1992] : la lumière incidente est d'autant plus diffusée que le flux contient un grand nombre de gouttelettes de petite taille.

$$\begin{cases} \alpha_{ext} = \Sigma_i \, \eta_i \, C_{sca,i} \\ C_{sca,i} = \left(\frac{\pi d_g}{\lambda}\right)^2 \end{cases} \quad \Rightarrow \; \alpha_{ext} \propto \Sigma_i \eta_i \left(\frac{\pi d_{g,i}}{\lambda}\right)^2 \tag{III.6}$$

Avec :

- d_g : Diamètre de la goutte [m],
- λ : Longueur d'onde de la source lumineuse [m].
- C_{sca} : section efficace [m^2]

III.3.3 Banc d'essai optique

Un dispositif expérimental représenté sur la figure III.18 a été conçu spécifiquement pour cette étude. Le but de cette étude étant d'effectuer des mesures de la diffusion de la lumière laser à travers une émulsion en formation dans le micro-canal (mesure in-situ, non intrusive et en ligne). Ce banc de test optique comprend, dans l'ordre de propagation du faisceau, une diode laser rouge (λ = 635 nm , P = 4,5 mW), un filtre 25% à densité neutre, une lentille plan-convexe pour la focalisation, le micro-canal, une lentille plan-convexe de dé-focalisation et la photo-diode. Les détails des composants optiques sont consultables sur le tableau III.4. La photo-diode est portée par une carte électronique. Cette dernière joue le rôle d'amplificateur du signal lumineux précédemment convertit par la photo-diode. La carte électronique est la liaison entre l'oscilloscope ou la chaine d'acquisition, selon le montage, et la photo-diode. Les détails du schéma électrique de cette carte sont explicités en Annexe III.

Le micro-canal est monté sur un dispositif conçu pour permettre un mouvement plan (voir la figure III.18). Il se compose de deux vis micrométriques, qui permettent un contrôle très précis de la translation toujours perpendiculairement au faisceau lumineux. Ce système est empêché de toute translation dans la direction de propagation de la lumière ou en sens inverse par des serrages. Un tel système est nécessaire pour la cartographie de la zone de croisement dans le micro-canal.

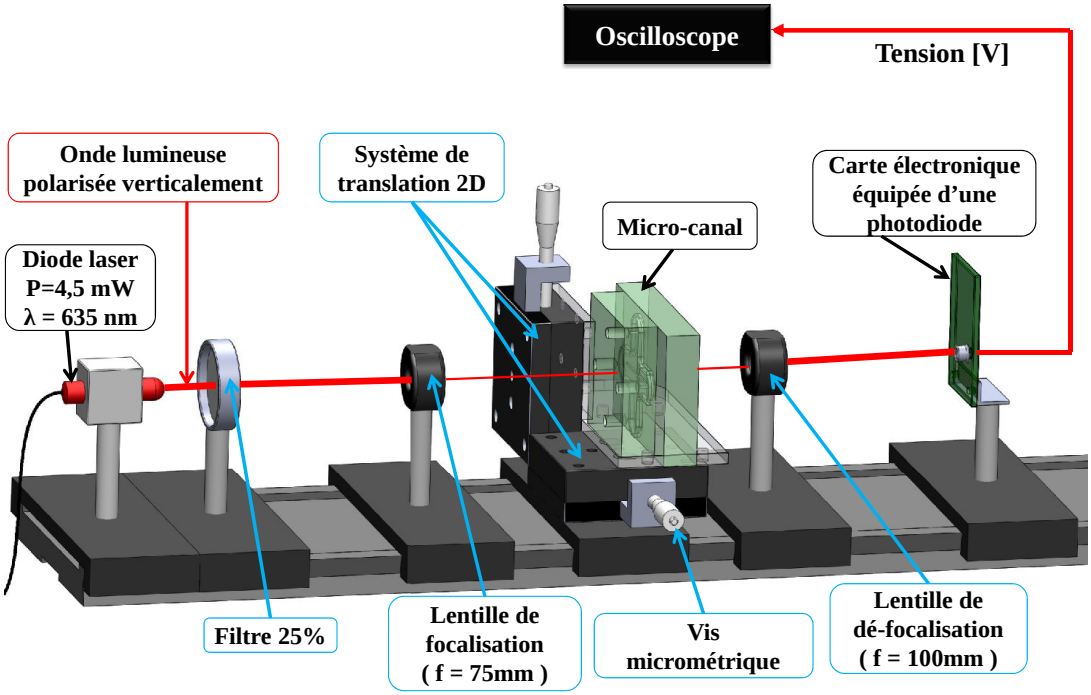


FIG. III.18: Le Banc d'essai optique.

a) Les caractéristiques optiques du laser

Le faisceau laser de type Gaussien et d'un diamètre initial de 2,5 mm est réduit pratiquement à un diamètre n'excédant pas 150 μm en traversant la lentille de focalisation (voir la figure III.19). Une telle concentration lumineuse du rayonnement ne peut être captée directement par la photo-diode, cela l'endommagera. La lentille de dé-focalisation permet d'éviter cette concentration lumineuse en redonnant sa taille initiale au faisceau laser. Dans un second rôle, cette lentille de dé-focalisation rejette la composante du faisceau sortant du plexiglas dont l'angle de propagation est supérieur à 5 degrés.

Les parois du micro-canal en plexiglas entrainent une déviation de l'angle du faisceau estimée à 50 % dû à un indice de réfraction de 1,49 [Kasarova *et al.*, 2007]. Cet angle de collection est estimé actuellement à ≤ 2,5 degrés (voir le schéma optique figure III.19). Comme mentionné dans la tableIII.4 sur le laser, celui-ci émet une seule longueur d'onde de 635 nm dont la fréquence d'oscillation est 10 kHz lui conférant une couleur rouge (monochromatique).

En résumé ce dispositif schématisé sur la figure III.18, nous mesurons la somme du faisceau laser transmis (I_t) + la lumière diffusée par l'émulsion ($I_{diff.}$) qui se diffuse dans l'angle solide couvert par le système de détection (représenté en vert clair sur la figure III.19). Sur la figure

Diode laser (Edmunds optics)	
Longueur d'onde	635 nm
Stabilité de la longueur d'onde	0,2 - 0,3 nm/°C
Diamètre du faisceau	2,5 mm
Divergence du faisceau	$1,5\ 10^{-3}$ rad
Précision de pointage	0,02 to 0,05 10^{-3} rad
Puissance	4,5 mW
Stabilité de puissance	+2 %/nominal
Fréquence de modulation	10 kHz

Filtre 25% de densité neutre (TECHSPEC)				
Diamètre de lentille	Densité optique	Épaisseur	Transmission	Indice de réfraction
25 mm	0,6	2,5 mm	25 % ±2,5	1,507

Lentilles					
	Distance focale	Diamètre de lentille	Matériau	Qualité de surface	
Lentille de focalisation Lentille de de-focalisation	75 mm 100 mm	10 mm	N-BK7	$\lambda/10$ à 633 nm avant revêtement	rayures et creux $\leq 10^{-5}$

Photo-diode (HAMAMATSU S1226-8BK)		
Gamme de réponse spectrale	La sensibilité maximale	Photo-sensibilité
320 à 1000 nm	720 nm	0,36 A/W

TAB. III.4: Caractéristiques des composants optiques du banc d'extinction laser.

III.19, ce point est mis en évidence pour une seule gouttelette. On remarque qu'une partie de cette lumière diffuse (représenté par les rayons bleus) est récoltée par le système de détection (photodiode).

Dans les mesures d'extinction, la quantité qui doit être mesurée est le rapport entre l'intensité incidente et transmise : I_t/I_o. Ce rapport, et uniquement ce rapport, suit la loi de Beer-Lambert. Cependant, en pratique, ce qui est mesuré dans une mesure d'extinction est $(I_t+I_{Diff.})/I_o$, où $I_{Diff.}$ étant l'intensité lumineuse diffusée par l'émulsion dans l'angle solide couvert par le système optique de détection. Pour cette raison, en général le détecteur qui mesure la lumière transmise est situé très loin par rapport à la région de diffusion (on parle de la distance "L" sur la figure III.19 qui doit être plus large).

De cette façon, l'angle solide couvert par le détecteur (en vert clair sur la photo) diminue et la quantité $I_{diff.}$ est réduite au carré de la distance L à une contribution négligeable ; dans un tel cas, ce qui est mesuré est très proche de I_t/I_o. En principe, le rapport I_t/I_o est mesuré seulement pour L = infini. Dans notre cas, L est petit (L = 100 mm) et l'angle solide couvert par la lentille de détection n'est pas petit, donc $I_{diff.}$ n'est pas petite et, par conséquent, nous ne sommes pas dans l'état d'une extinction laser parfaite.

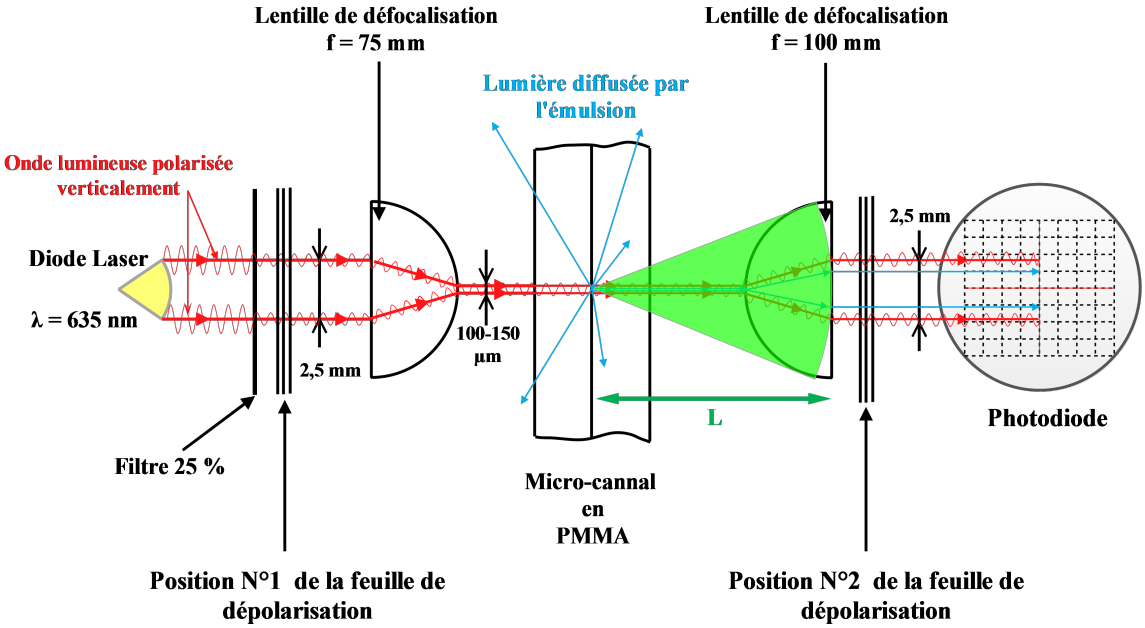


FIG. III.19: Schéma optique simplifié du banc d'extinction laser.

b) Tests de perpendicularité du faisceau laser

La perpendicularité est vérifiée au moyen d'un test simple, consistant à faire passer le faisceau laser focalisé au travers du micro-canal. Le parcours du laser, réalisé en déplaçant le micro-canal, est illustré sur figure III.21 et figure III.20 par un trait rouge discontinu respectivement entre A - B et B - C. Les mesures d'extinction laser sont réalisées selon un maillage précis entre les points A, B et C de manière à obtenir un espacement de 50 μm pour les zones proches des extrémité (proche des bornes A, B et C) et seulement 10 μm pour les zones d'intérêt (proche des parois et à l'intérieur du canal). Au cours de cet essai, les canaux sont remplis d'huile de tournesol pure (phase continue). Comme expliqué précédemment, en raison de propriétés optiques (indice de réfraction) très proches entre l'huile de tournesol et le PMMA des parois des canaux, la rugosité du canal obtenu par usinage est estompée. En effet, l'huile de tournesol comble les aspérités et les imperfections résultant de l'usinage. Par ce moyen, la continuité optique est assurée et on arrive à une bonne transmission du faisceau laser incident (I_i).

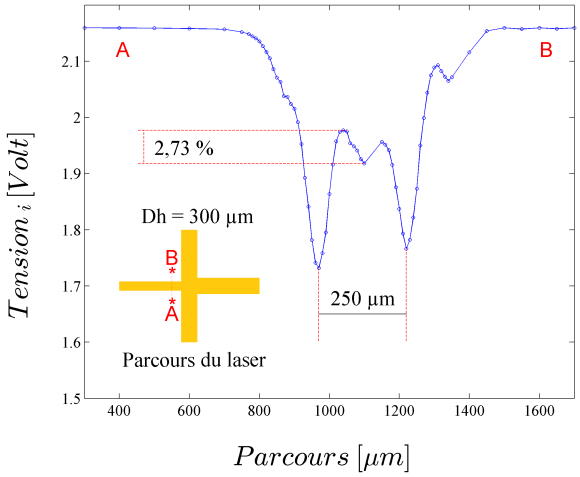


FIG. III.20: Premier test sur le canal Dh = 300 μm.

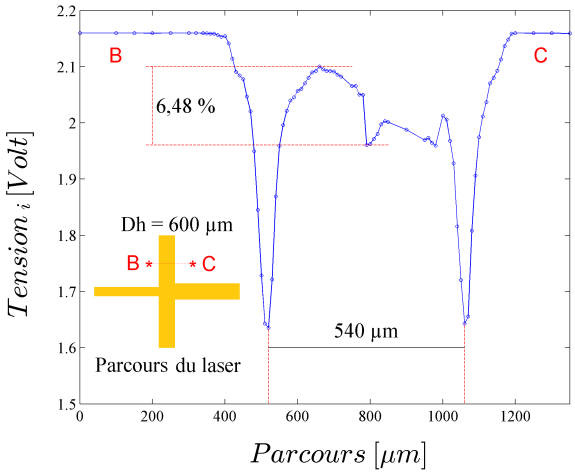


FIG. III.21: Premier test sur le canal Dh = 600 μm.

Les singularités qui apparaissent sur la partie du signal d'extinction entre les deux pics négatifs sont des bavures d'usinage causées par la fraise lors de l'usinage. La figure III.22 montre une représentation schématisée du fond et des parois du canal usiné. Les images sont issues d'une visualisation avec profilomètre laser qui indiquent une rugosité moyenne des micro-canaux allant de 0,5 à 0,7 μm.

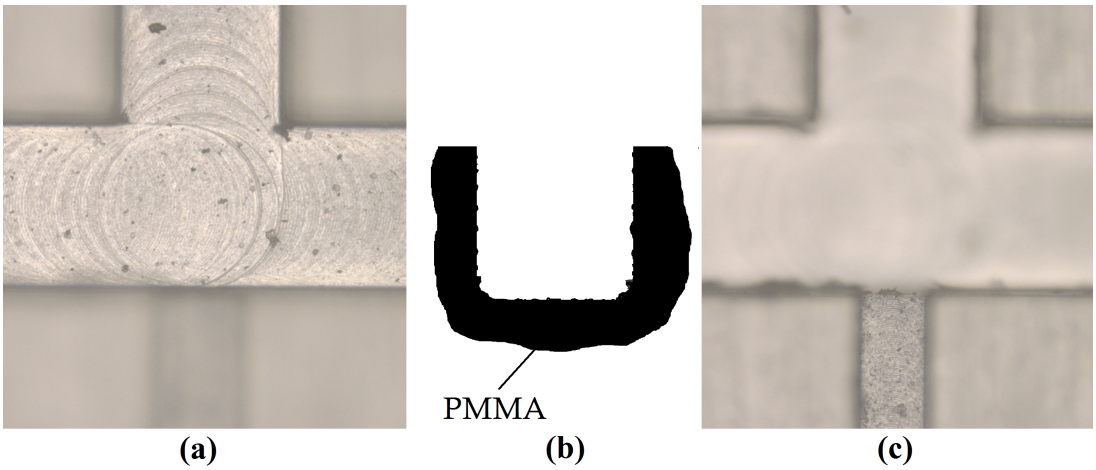


FIG. III.22: Image obtenues avec le profilomètre sur le fond du micro-canal : a - mise au point avec le profilomètre sur le fond des canaux d'admission d'huile et d'émulsion, b - représentation d'une coupe transversale d'un canal obtenu par usinage à la fraise, c - mise au point avec le profilomètre sur le fond du canal d'admission d'eau.

⚠

La perte de perpendicularité se manifesterait par une tension différente aux points A, B et C, ce qui n'est pas du tout le cas ici.
En raison de la rugosité existant au fond des canaux gravés par méthode de fraisage, nous estimons l'erreur de mesure de l'extinction laser à moins de 10 %.

$$D_{laser} = 2 \times (D_h - Distance\ inter - pics) \tag{III.7}$$

Cette expérience nous permet d'estimer énergétiquement le diamètre du faisceau focalisé. Les deux pics négatifs représentent l'interaction entre la lumière et les parois du micro-canal. En relevant la distance entre les pics observés sur les figures III.20 et III.21 et connaissant précisément le diamètre hydraulique de chaque micro-canal, il est possible avec la formule III.7 d'estimer le diamètre du laser focalisé. D'après les figures III.20 et III.21, le diamètre du faisceau laser est de 100 à 120 μm.

III.3.4 Calibration de la technique d'extinction laser

Afin de calibrer la diffusion de la lumière laser, on entreprend d'alimenter les micro-systèmes avec des émulsions. Ces émulsions sont préparées à l'aide d'un agitateur magnétique (VWR VMS-6C4), en agitant à une vitesse de 750 tours par minute pendant 10 minutes. La température de l'émulsion est maintenue à 25°C ±1 °C durant la préparation. L'émulsion est ensuite pompée dans le micro-canal suivant la configuration représenté sur la figure III.23. Le débit de pompage de l'émulsion est fixe et atteint 50 ml/min et la pression de pompage est équivalente à 9 bars.

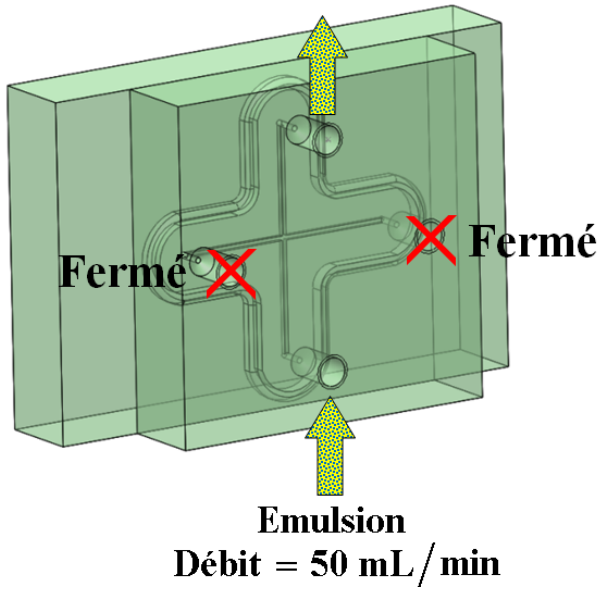


FIG. III.23: Configuration du micro-canal pour les tests de calibration.

L'émulsion circule dans le canal droit comme indiqué sur la figure III.23. Pour cela deux canaux sur quatre sont obturés. La mesure de l'extinction est réalisée au niveau d'un point fixe dans le micro-canal. Dans le cas présent, il est repéré à une distance de 9 $D_h \simeq 5$ mm du croisement (voir La figure III.24). Le signal lumineux transformé en tension par la photo-diode est ainsi enregistré à l'aide d'un oscilloscope (Tectronix TDS2022B). Ce dernier permet l'enregistrement d'une seule fenêtre du signal uniquement, dont la longueur correspond à 10 pas de temps, répartis en 2500 points de mesures systématiquement. La durée d'enregistrement dépend uniquement de la fréquence de l'acquisition réglée sur cet appareil.

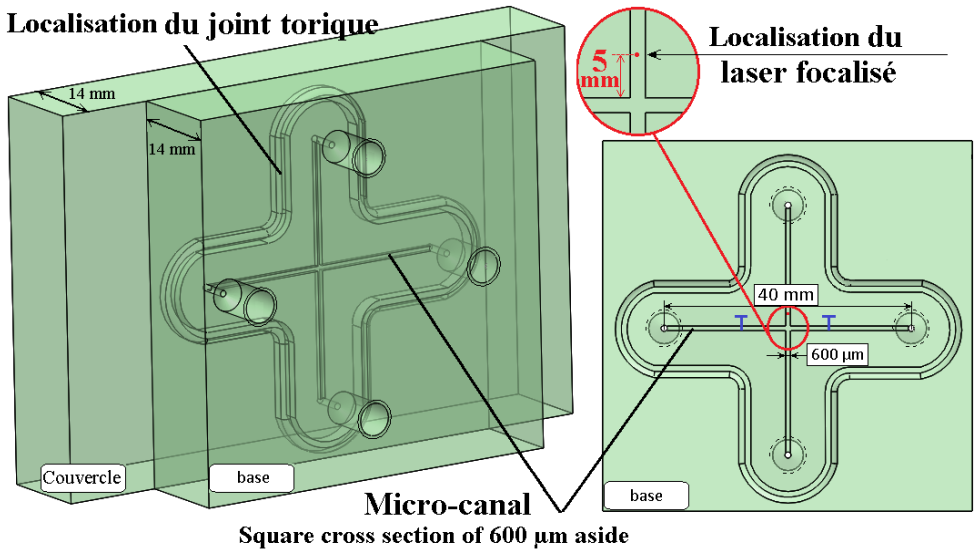


FIG. III.24: Localisation de la zone de pointage du laser.

Afin de d'étalonner le modèle théorique énoncé par l'équation III.6, des tests d'émulsification sont effectuées afin de caler les résultats expérimentaux au modèle théorique énoncé plus haut. La première série de tests est représentée sur la figure III.25 qui réunit le rapport des intensités lumineuses transmises et incidentes (I_t/I_0) pour différentes fractions massiques en eau à savoir de 1% à 5%. En d'autres termes, le faisceau laser est amené à traverser des émulsions de différentes fractions massique d'eau.

Dans la mesure où la fraction massique de l'eau augmente, cela conduit inévitablement à une augmentation du nombre de gouttes "η". A partir de cette équation III.6 (voir § II.3.a), si le nombre de gouttelettes "η", augmente tandis que la distribution de la taille, et donc la section de diffusion C_{sca}, reste inchangée ; le coefficient d'atténuation augmentera linéairement avec η (voir la figure III.25). L'atténuation du signal s'écrit :

$$\frac{I_t}{I_0} = e^{-Cste\ \eta} \tag{III.8}$$

Avec :

– I_t : l'intensité lumineuse transmise [W/m^2],

– I_i : l'intensité lumineuse incidente [W/m^2]

– Cste : est une constante d'ajustement du modèle théorique,

– η : nombre de gouttes.

Les résultats expérimentaux représentés sur la figure III.25 par des carrés bleus sont ajustés par la ligne rouge issues de la relation (III.8).

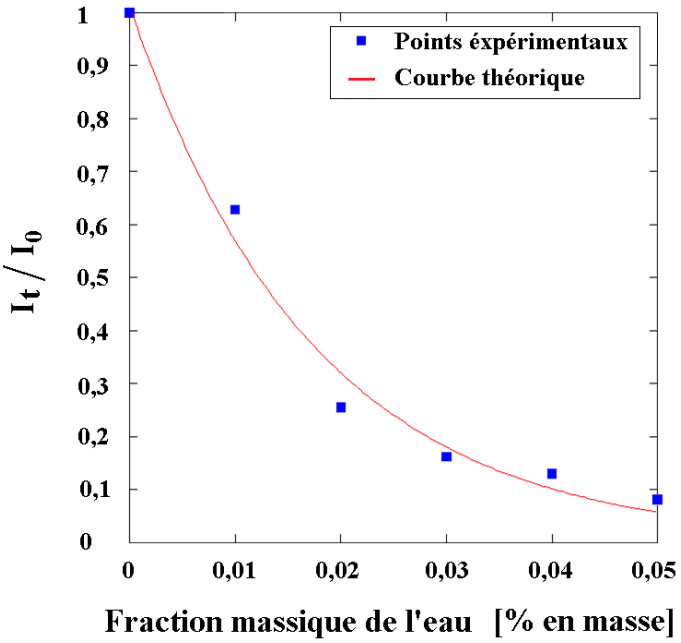


FIG. III.25: Atténuation du signal lumineux en fonction de la fraction massique d'eau.

Dans un deuxième temps, l'étalonnage de la lumière diffusée est poursuivi en considérant l'influence du diamètre moyen (d_{10}) des gouttelettes. Alors, la figure III.26 est obtenue pour des émulsions ayant différents diamètres moyens de la phase dispersée. Sachant que le protocole de production des émulsions est identique pour l'ensemble des préparations, le diamètre des gouttes est quant à lui varié en gardant fixe la fraction massique de l'eau à 1,5 % et faisant varier la teneur massique en Span83 de 0,1 % à 0,5 % par pas de 0,1 %. La variation de la teneur massique en émulsifiant permet d'agir sur la tension inter-faciale ($\gamma_{e/h}$). Le diamètre moyen de gouttelettes est compris dans la gamme de 9 à 18 μm. Pour une fraction massique de l'eau constante (1,5% en masse), la moindre augmentation du diamètre moyen des gouttes (d_{10})

implique une réduction du nombre de gouttelettes d'eau (η). La réduction de η est inversement proportionnelle au volume de gouttelettes ($\eta \propto d^{-3}$). La section efficace (C_{sca}) étant proportionnelle au diamètre au carré ($C_{sca} \propto d^2$), il en résulte :

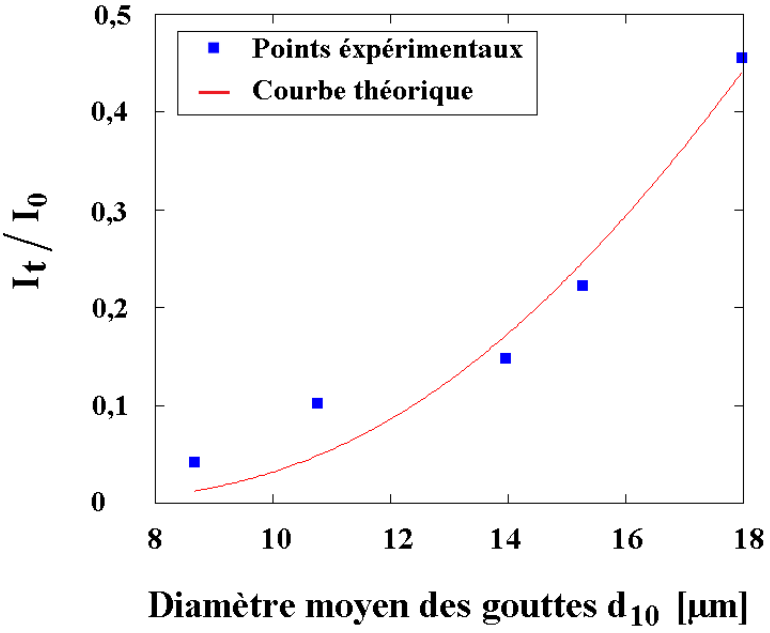


FIG. III.26: Variation de l'atténuation du signal lumineux en fonction du diamètre des gouttes pour une fraction massique de 1,5 % l'eau.

$$\frac{I_t}{I_0} = e^{-\frac{Cste}{d_{10}}} \tag{III.9}$$

Avec :

- I_t : l'intensité lumineuse transmise [W/m^2],
- I_0 : l'intensité lumineuse incidente [W/m^2]
- Cste : est une constante d'ajustement du modèle théorique,
- d_{10} : diamètre moyen des gouttes [m].

a) La polarisation optique du laser

Au cours du processus d'émulsification, l'interaction entre l'huile et l'eau génère des inhomogénéités dans la zone de mélange, caractérisé par des zones macroscopiques de stratification des fluides, des surfaces de séparation, élongation des liquides et filaments, la rupture de ce qui va générer des gouttelettes. Ces gouttelettes d'eau formées (dans le cas présent) représentent la phase dispersée de l'émulsion ; la phase continue est formée par l'huile de tournesol. La dé-polarisation de la lumière polarisée linéairement peut être utile pour distinguer la zone de

transition de la zone où l'émulsion est bien formée. Dans une première série de tests, la dé-polarisation de la lumière a été mesuré lorsque le micro-canal est alimenté par de l'huile pure. Dans ces conditions, le taux de dé-polarisation dont la formule est donnée par : ρ_{HV}=T_{HV}/T_{VV} est estimée à 2%. Sachant que T_{HV} et T_{VV} représentent respectivement les intensités lumineuses mesurées lorsque la feuille polarisée (voir la figure III.19) est orientée horizontalement et verticalement. Dans une deuxième série de tests, une émulsion préformée a été envoyée au système de micro-canal. L'émulsion est formée par dispersion de 1,5% en masse d'eau dans de l'huile par un agitateur magnétique [Belkadi *et al.*, 2012]. Dans ce cas, le taux de dépolarisation, mesurée à deux endroits de la traverse à micro-canaux, était d'environ 9 %.

Comme explicité dans le paragraphe § II.5.2 (voir la figure II.21), pendant la campagne de mesures, la direction de polarisation privilégiée est horizontale. La polarisation est en définition l'orientation (direction) des oscillations des ondes vectorielles telle que la lumière. Afin de bien de caractériser la polarisation d'un faisceau laser, il existe un critère dit coefficient de corrélation co-polaire (ρ_{HV}) [Liu, 1994, Massoli *et al.*, 1989]. Ce coefficient exprime le rapport de la polarisation horizontale sur la polarisation verticale, il est calculé par la formule suivante :

$$\rho_{HV} = \frac{T_{HV}}{T_{VV}} \tag{III.10}$$

Avec :

- T_{HV} : Tension relevée par la photo-diode lors une polarisation horizontale [Volts],
- T_{VV} : Tension relevée par la photo-diode pour une polarisation verticale [Volts].

T_{HV} et T_{VV} sont déterminées en plaçant une feuille polarisée devant le filtre 25 % du banc optique représenté sur la figure III.19. La feuille polarisée laisse passer la lumière oscillant suivant une direction unique. T_{HV} correspond à la tension enregistrée par la photo-diode lorsque cette feuille polarisée est placée à l'horizontale. T_{VV} correspond à la tension enregistrée par la photo-diode lorsque cette feuille polarisée est placée à la verticale. Dans le cas des expériences menés dans cette étude, ce coefficient de corrélation co-polaire ρ_{HV} est égal à 1,2 %, indiquant un faisceau laser fortement polarisé verticalement.

La figure III.27 schématise le sens de polarisation du faisceau laser et envoyé à travers le micro-canal choisi comme procédé d'émulsification dan cette étude.

N.B. : Un exemple de lumière collectée est donnée en Annexe .4

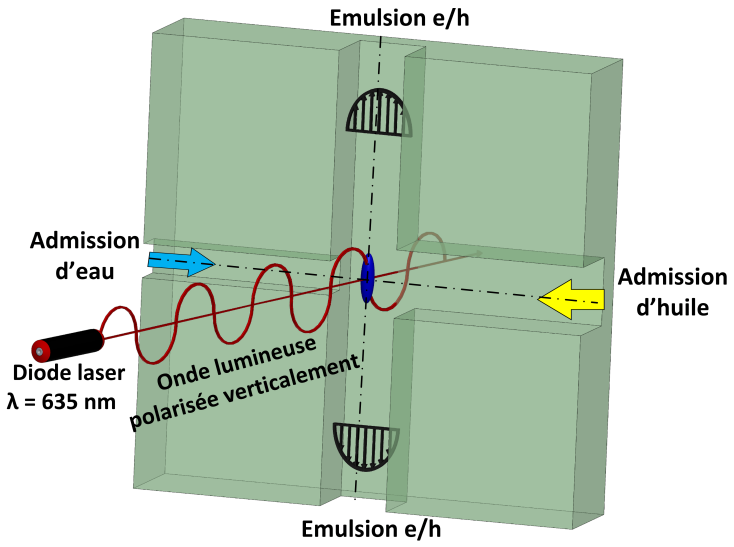


FIG. III.27: Schématisation du faisceau laser polarisé et envoyé à travers le micro-canal.

III.4 Conclusion

Dans ce troisième chapitre, l'ensemble des matières, du matériel expérimental et des protocoles opératoires sont présentés, commentés et largement détaillés. Aussi, certains matériels ont permis de confirmer des lois comme celle de l'isotherme de Gibbs pour la variation de la tension inter-faciale en fonction de la teneur en émulsifiant Span83, ou encore d'étalonner une mesure optique telle que la mesure d'extinction laser à travers une émulsion d'eau dans huile de tournesol.

En particulier, deux techniques expérimentales et non intrusives sont présentées. Ces dernières sont respectivement la techniques d'imagerie à haute fréquence classique et une technique de collecte de lumière laser. De ces deux techniques de mesure in-situ est attendu le recueil d'informations sur la localisation et la nature des mécanismes de fractionnement dans le système d'émulsification étudié ici ; lequel est soumis à de hauts débits de matière.

Chapitre IV

Écoulements diphasiques à jets impactants - influence de la géométrie des canaux sur le fractionnement de l'émulsion eau dans huile

Sommaire

IV.1 Introduction 76

IV.2 Étude du procédé d'émulsification à travers les micro-canaux en croix 76

IV.3 Étude des écoulements diphasiques à travers le micro-système "600-600" . . . 79

IV.4 Diamètre hydraulique du canal d'eau réduit à 300 μm 83

IV.4.1 Visualisations des écoulements dans le micro-système "300-600" 85

IV.4.2 Visualisations des écoulements dans le micro-système "300-800" 86

IV.5 Diamètre hydraulique du canal d'eau réduit à 200 μm 87

IV.5.1 Visualisations des écoulements dans le micro-système "200-600" 88

IV.5.2 Visualisations des écoulements dans le micro-système "200-800" 89

IV.6 Comparaison des résultats d'émulsification des micro-canaux 90

IV.6.1 Comparaison à l'aide du critère des pressions relatives 90

IV.6.2 Comparaison sur la base du critère de la granulométrie des émulsions obtenues 91

IV.6.3 Critère de choix pour le micro-système adapté à l'émulsification 93

IV.7 Conclusion 97

IV.1 Introduction

Ce chapitre concerne le développement du procédé d'émulsification à jets impactants confinés dans des micro-canaux de sections carrées et formant une croix. Les émulsions produites sont de type eau dans huile (e/h). Afin de réaliser les objectifs énoncés en introduction de ce travail, une campagne expérimentale d'émulsification est menée en faisant varier les paramètres physiques intervenants dans ce processus. Ces derniers sont d'ordres géométriques (dimensions des canaux) ou bien intrinsèques aux deux phases employées (débit et viscosité).

En s'inspirant du travail réalisé par [Montillet et al., 2013], un micro-système de référence a été initialement testé. Ce dernier est caractérisé par des sections de passage des canaux de formes carrées et identiques (600 μm)^2. La longueur des canaux a été réduite de plus 50 % par rapport au système précédent [Montillet et al., 2013] afin de réduire le niveau des pertes de pression (voir la figure IV.1). En raison des exigences d'émulsification liées à l'application visée, c'est à dire une fraction volumique d'eau de moins de 10 % et une granulométrie la plus fine possible, l'amélioration du design du micro-système de référence a été imaginée en usinant quatre micro-canaux dits à "marche variable", toujours dans du PMMA (Plexiglas). Le terme micro-système à marche variable indique que le diamètre hydraulique du canal d'admission de l'eau (phase dispersée) est inférieur à celui de l'huile (phase continue). Le diamètre hydraulique des deux canaux de sortie de l'émulsion est identique à celui de l'admission d'huile.

On adopte la désignation suivante pour les micro-canaux en croix usinés : "600-600", "300-600", "200-600", "200-800" et "300-800". Sachant que l'ensemble des canaux possèdent des sections carrées, le premier chiffre désigne le diamètre hydraulique du canal d'admission d'eau en micromètres (Dh_{eau}). Le second chiffre étant le diamètre hydraulique des trois canaux restants, c'est à dire le canal d'admission d'huile (Dh_{huile}) et les deux canaux de sortie de l'émulsion ($Dh_{emulsion}$).

IV.2 Étude du procédé d'émulsification à travers les micro-canaux en croix

En raison du nombre important de paramètres influençant le présent procédé d'émulsification, dit à jets impactants confinés dans un micro-système, un certain nombre d'entre eux sont fixés. Ces derniers sont maintenus constants uniquement dans le but de limiter les variables et ensuite faciliter le travail de comparaison entre ces différents micro-canaux. Les paramètres fixés pour les besoins de cette partie du travail, c'est à dire pour le chapitre IV, sont : la tension inter-faciale $\gamma_{e/h}$ = 16,6 mN/m (correspondant à 0,1 % de Span83 en masse de la phase conti-

nue), la viscosité de la phase continue employée (huile de Tournesol : μ_{huile} = 52,2 mPa.s) et la viscosité de la phase dispersée (eau : μ_{eau} = 0,91 mPa.s). Comme explicité en introduction de ce travail, on vise la production d'émulsions (e/h) à hauts débits. Le débit d'huile de tournesol appliqué à travers l'ensemble des micro-canaux est de 77 mL/min ± 10 mL/min. La température des deux phases est également maintenue à 25 °C ± 1 °C, cela dans le but de maintenir la viscosité des deux phases ainsi que la tension inter-faciale constante. Cependant, un échauffement pouvant atteindre 4 °C est constaté pour l'émulsion en sortie. Cet échauffement est dû aux diverses dissipations visqueuses des fluides dans le circuit hydraulique et le micro-système.

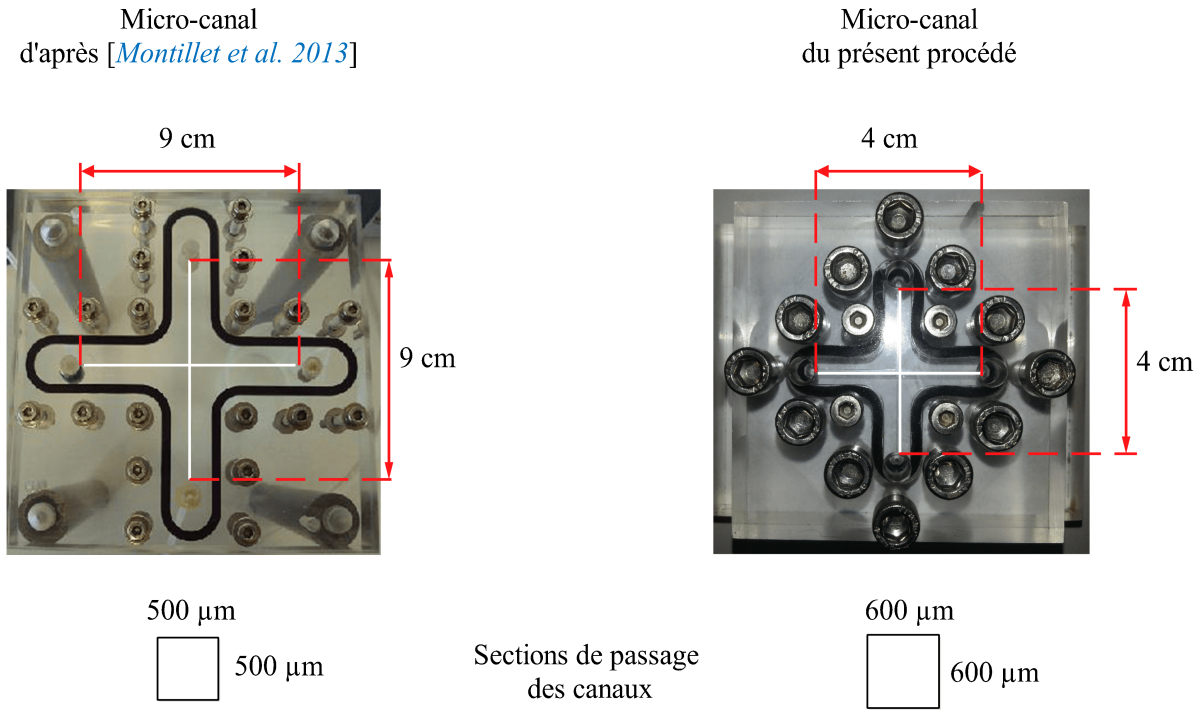


FIG. IV.1: Modifications apportées au micro-système expérimenté.

Cette étude commence par l'analyse de l'émulsification à travers le micro-système à sections uniformes qui sera une référence. Les résultats de ce micro-système "600-600", à l'issue des essais d'émulsification, sont réunis dans le tableau IV.1. Le débit d'huile est fixé lors de ces expériences à 65 mL/min ±4 mL/min. Le débit d'eau varie entre 4,48 et 13,15 mL/min. Des émulsions de type eau dans huile sont obtenues, dont la fraction volumique d'eau dispersée (φ_e) est comprise entre 6 et 18 %.

Les nombres capillaires, selon la définition donnée par l'équation (II.16) au paragraphe § II.3.1(b), sont élevés et relativement invariants (Ca est égal à 5,5 ± 0,3). L'application de débits importants pour les deux phases, combiné à une viscosité de la phase continue élevée et une tension inter-faciale abaissée, explique ces nombres capillaires importants. Dans les ca-

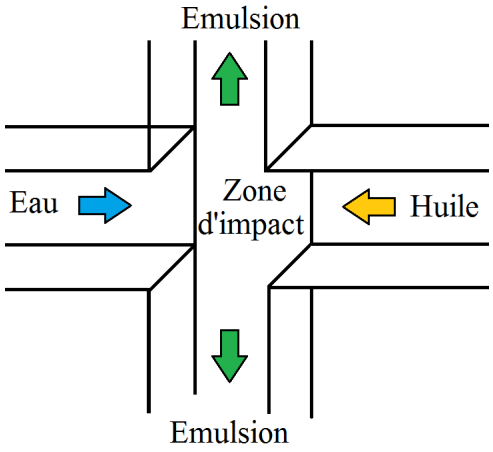


FIG. IV.2: Représentation en 3D du croisement du micro-système "600-600" en croix.

naux d'entrée, les nombres de Reynolds pour l'écoulement d'huile (Re_h) oscillent entre 29 et 32 et pour l'écoulement d'eau (Re_e) oscillent entre 137 à 401. Sachant que la longueur des canaux représente 33 Dh (avec Dh = 600 μm), cela permet d'émettre l'hypothèse de l'apparition d'un régime d'écoulement laminaire en canal d'admission pour les deux phases. La fin du canal d'entrée correspond à l'entrée de la zone d'impact (zone de dispersion). La présence de la zone d'impact localisée au croisement réduit la vitesse de chacun des liquides **à l'issue de leur impact favorisant l'augmentation de la contrainte de cisaillement et le fractionnement** [Ait Mouheb *et al.*, 2011]. L'émulsion au niveau des canaux de sortie s'écoule également en régime laminaire (voir la figure IV.2). Des structures locales dans l'écoulement sont attendues, surtout au niveau du croisement. Le changement de direction des fluides (lignes de courant courbes) favorise le fractionnement.

Concernant le nombre de Reynolds d'une goutte d'eau de l'émulsion de diamètre d_{10} dans les canaux de sortie, exprimé par $Re = \rho_d \, v_m \, d_{10}/\mu_c$, il est compris entre 0,6 et 1,18.

Les diamètres moyens des gouttelettes mesurés (d_{10}) sont compris entre 19 et 33 μm (voir le tableau IV.1). Le diamètre moyen "d_{10}" du premier test est de 33,16 μm pour un débit de 4,48 mL/min. Un quasi-triplement de la fraction volumique d'eau (Q_e) s'est accompagné d'une diminution de 34 % de diamètre moyen des gouttelettes (d_{10}). On constate que l'augmentation de la vitesse débitante de l'eau favorise le fractionnement de manière significative.

L'évaluation de la polydispersité du diamètre des gouttelettes par rapport à une moyenne (d_{10}) indique un pourcentage important allant de 75 à 95 %. Ces pourcentages indiquent que le micro-système "600-600" est un procédé d'émulsification produisant des émulsions de type

(e/h) polydispersées (voir la définition au paragraphe § II.2.2).

(Q_h ; Q_e) [mL.min^{-1}]	φ_e [%]	(P_h; P_e) [bar]	d_{10} [μm]	η_i/n_{min} [%]	$P(d_{10})$ [%]	Ca	Re	(Re_h ; Re_e)
0,1% Span83 - (μ_h = 52,2 $mPa.s$, $\gamma_{e/h}$ = 16,6 mN/m, k^{-1} = 3,57 mm)								
(67,31 ; 4,48)	6,24	(6,33 ; 3,11)	33,16	70,2	93,7	5,2	1,05	(31 ; 137)
(69,91 ; 6,21)	8,15	(6,52 ; 3,21)	34,92	132,4	76,9	5,5	1,18	(32 ; 189)
(69,68 ; 9,65)	12,17	(6,56 ; 3,23)	19,24	343,7	76,1	5,8	0,67	(32 ; 294)
(62,39 ; 13,15)	17,41	(6,32 ; 3,10)	21,89	178,9	94,3	5,5	0,64	(29 ; 401)

TAB. IV.1: Données d'émulsification à travers le micro-système "600-600" à T=25° C.

Avec :

- Q_h et Q_e : respectivement le débit d'huile et d'eau en [mL/min],
- φ_e : la fraction volumique de l'eau donnée en [%], sachant que $\varphi_e = \frac{Q_e}{Q_e+Q_h}$,
- P_h et P_e : respectivement la pression relative d'huile et d'eau en [Bar],
- d_{10} : diamètre moyen [μm] (voir le tableau II.3, § II.2.2),
- k^{-1} : longueur capillaire [m] (voir le paragraphe § II.4.1 (a)),
- n_i/n_{min} : rapport en [%] de la longueur de l'échantillon de gouttelettes analysées par rapport à une précision I = 10 % de la loi normale de distribution , § II.2.2,
- $P(d_{10})$: Polydispersion de la distribution de gouttelettes d'une émulsion en [%] (voir § II.3.2, équation (II.12)),
- Ca : le nombre capillaire exprimé par $Ca = \frac{\mu_c\, v_m}{\gamma_{e/h}}$ (voir le paragraphe § II.3.1(b)),
- Re : le nombre de Reynolds exprimé par $Re = \frac{\rho_d\, v_m\, d_g}{\mu_c}$ (voir le paragraphe §II.3.1(a)),
- Re_h et Re_e : respectivement le nombre de Reynolds dans le canal de la phase continue (huile) et de la phase dispersée (eau), avec Re$_h$ = $\frac{\rho_h\, v_h\, Dh_h}{\mu_h}$ et Re$_e$ = $\frac{\rho_e\, v_e\, Dh_e}{\mu_e}$.

IV.3 Étude des écoulements diphasiques à travers le micro-système "600-600"

A l'aide d'une caméra rapide (voir § II.2), des acquisitions sont effectuées pendant les essais d'émulsification résumés sur le tableau IV.1. L'impact des deux écoulements (eau et huile de tournesol) se produisant au niveau du croisement, un intérêt particulier est donc porté à cette

zone durant la campagne de visualisation à haute fréquence. En raison de vitesses débitantes (v_e et v_h) élevées, dans les canaux d'admission à savoir : **la vitesse de l'eau ($\mathbf{v}_e$) varie entre 0,8 et 2,44 m/s et la vitesse de l'huile de tournesol ($\mathbf{v}_h$) varie entre 2,8 et 3,3 m/s**, des fréquences d'acquisition élevées sont employées. La campagne de mesures est menée avec une fréquence d'acquisition de 10 kHz. Afin de ne pas manquer de capturer des phénomènes de fractionnement très rapides, nous avons utilisé la durée d'exposition du capteur CMOS de la caméra de 1 μs. Pour les vitesses débitantes indiquées ci-dessus et pour une telle durée d'exposition, on estime le parcours moyen d'une gouttelette **inférieur à 0,5 μm** entre deux prises d'image. Cette courte durée d'exposition nécessite un éclairage plus intense mais permet de capturer des mouvements très rapides.

Les figures IV.3, IV.4, IV.5 et IV.6 représentent des acquisitions d'images, obtenues avec la caméra rapide au niveau du croisement et durant des conditions réelles d'émulsification (en ligne). Signalé par une flèche de couleur bleue, l'eau pénètre par le canal horizontal gauche. Ce même canal apparait noirci en raison d'une différence d'indice de réfraction eau (n_{eau}=1,33) et le PMMA (n_{PMMA}=1,49). L'huile de tournesol possède un coefficient de réfraction proche de celui du PMMA (n_{huile}=1,47).

En conséquence de l'impact au croisement entre les deux écoulements des deux phases (eau et huile), la phase dispersée (eau) jaillit en formant une courbure de forme caractéristique localisée juste en sortie du canal d'admission d'eau (canal de gauche sur les figures IV.3, IV.4, IV.5 et IV.6). Une explication d'ordre théorique et une simulation quantitative de cette courbure remarquable serait possible avec des modèles perfectionnés du type "Level-set" [Tanguy et Berlemont, 2005]. L'ouverture de cette courbure de forme caractéristique est orientée vers l'admission de l'huile. A mesure que le débit de la phase dispersée (eau) augmente, les extrémités de cette structure parabolique s'écartent. A titre d'exemple la courbure de forme caractéristique affichée sur la figure IV.3, pour un débit d'eau de 4,48 mL/min l'écartement est évalué à 1 Dh (Dh = 600 μm) de part et d'autre de l'axe de symétrie indiqué en trait mixte rouge. En revanche, sur la figure IV.6, pour un débit d'eau de 13,15 mL/min on assiste à une écartement plus important estimé à 1,5 Dh. Aux deux extrémités de cette courbure de forme caractéristique, se forme deux autres structures hydrodynamiques tourbillonnaires sombres.

Ce "swirl" est le résultat de l'enroulement de la structure caractéristique sur elle même. Cet enroulement évoque probablement la présence d'une émulsion (e/h) à forte concentration en

eau (phase dispersée) qui trouve naissance effectivement au croisement. Ensuite, cet enroulement adopte une forme cylindrique tout en se dirigeant simultanément vers les deux sorties de part et d'autre du croisement. Cet enroulement de la phase dispersée de forme cylindrique est entourée par la phase continue, de manière similaire à un écoulement co-courant. Le diamètre de ce cylindre est estimé égal au 1/5 du diamètre hydraulique du canal de sortie (Dh = 600 μm) pour les trois premiers débits (voir les figures IV.3 IV.4 IV.5). Pour un débit d'eau plus important, l'enroulement de la phase dispersée s'étale sur un diamètre plus important, ou encore adopte une forme "éclatée" formant un enchevêtrement de filaments d'eau (voir la figure IV.6). Les filaments d'eau ainsi formés, s'étirent et se fractionnent dans le sens d'écoulement vers la sortie.

Comme mentionné plus haut, le micro-système à sections uniformes "600-600" permet d'obtenir des émulsions (e/h) dont le diamètre moyen (d_{10}) des gouttes de la phase dispersée (eau) est compris entre 19 et 33 μm. Ce diamètre moyen est considéré comme étant trop important vis à vis de l'application visée par un tel procédé. En guise de solutions à apporter aux limites rencontrées par le procédé d'émulsification à travers le micro-système "600-600", on envisage :

- Tout en gardant la longueur des canaux tel qu'indiqué sur la figure IV.1(B), réduire le diamètre hydraulique de l'admission d'eau à 300 μm puis à 200 μm (voir la figure IV.8). Les sections des canaux de sortie d'émulsion et celui d'admission d'huile gardent une section de 600 μm de côté (voir la figure IV.7-(B)). Une section d'admission pour l'eau (S_e) faible permet également de réduire le volume d'eau dispersé et donc la fraction volumique d'eau (φ_e) tout en assurant un niveau de vitesse élevée. Ces dimensions de canaux d'admission d'eau (200μm et 300μm de côté) ont été imposées par des contraintes techniques de fraisage.
- Deux autres configurations ont également été réalisées avec des sections de canaux de sortie de l'émulsion et d'admission d'huile augmentées, atteignant 800 μm de côté. Cela afin de tester l'influence d'une diminution des chutes de pression dans ces canaux sur les caractéristiques des émulsions produites.

Mais le principal avantage attendu des ces configurations à "marche variable" consiste en une recirculation en "Swirl" dans le croisement, qui améliorerait le fractionnement en raison d'une courbure accrue des lignes de courant, et par conséquent d'une contrainte de cisaillement plus intense. Les différentes sections des canaux à "marche variable" sont détaillées sur la figure IV.8.

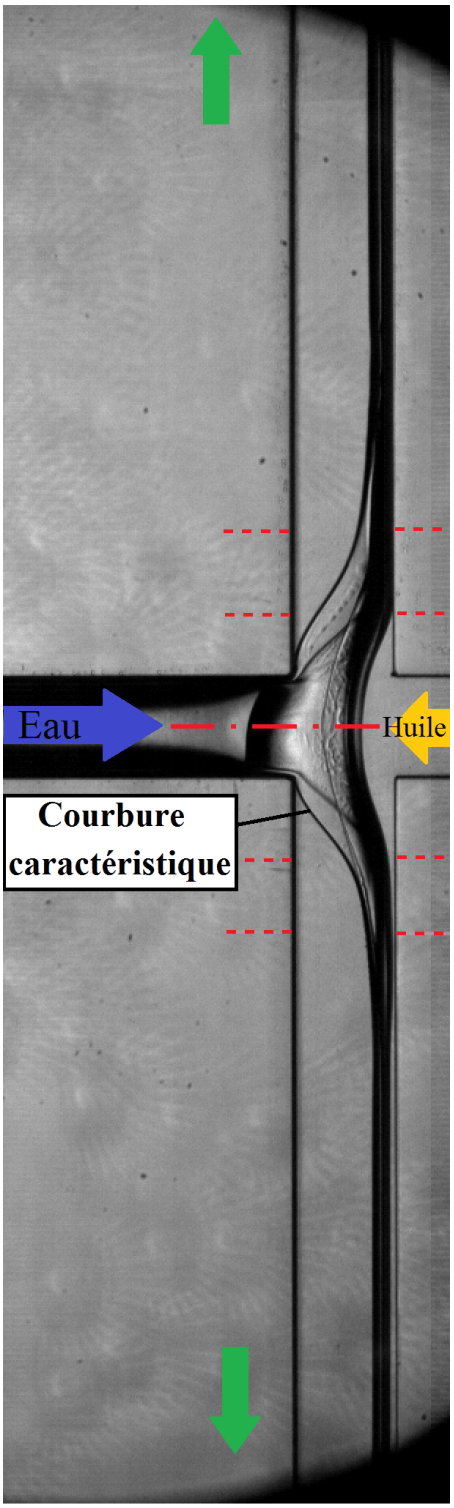


FIG. IV.3: Test 1 : Q_e=4,48 mL/min avec 0,1 % de Span83, d_{10}=33,16 μm.

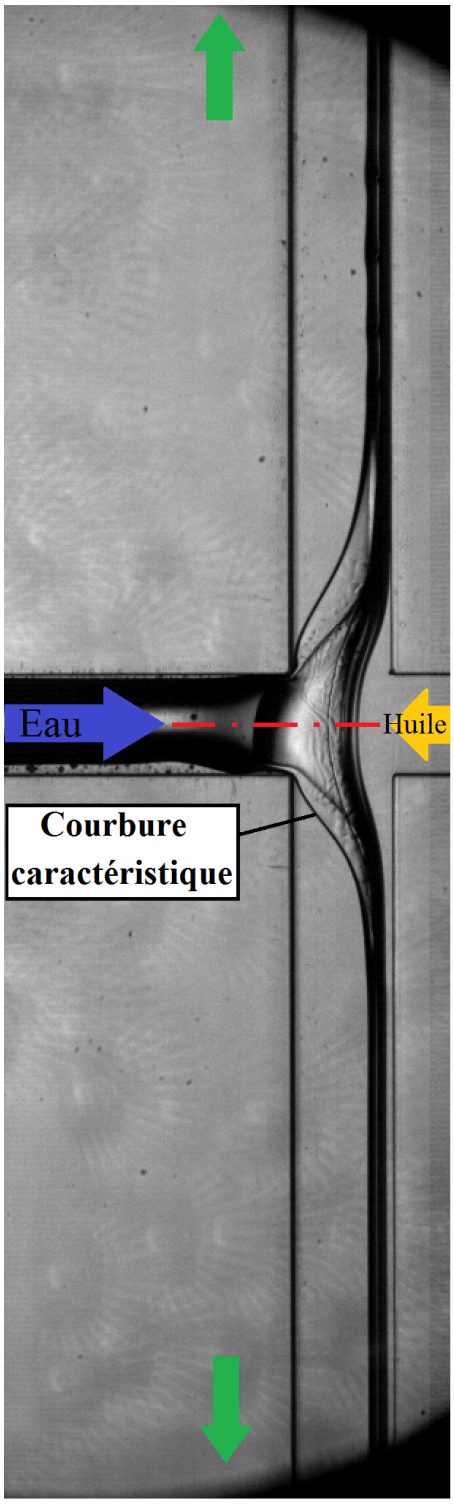


FIG. IV.4: Test 2 : Q_e=6,21 mL/min avec 0,1 % de Span83, d_{10}=34,92 μm.

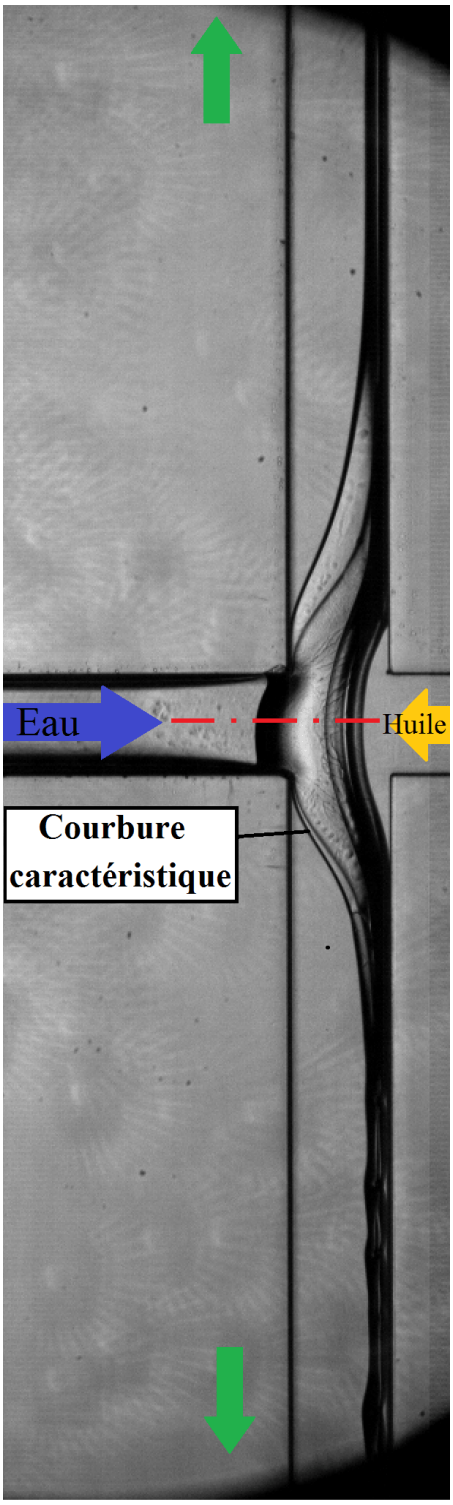


FIG. IV.5: Test 3 : Q_e=9,65 mL/min avec 0,1 % de Span83, d_{10}=19,24 μm.

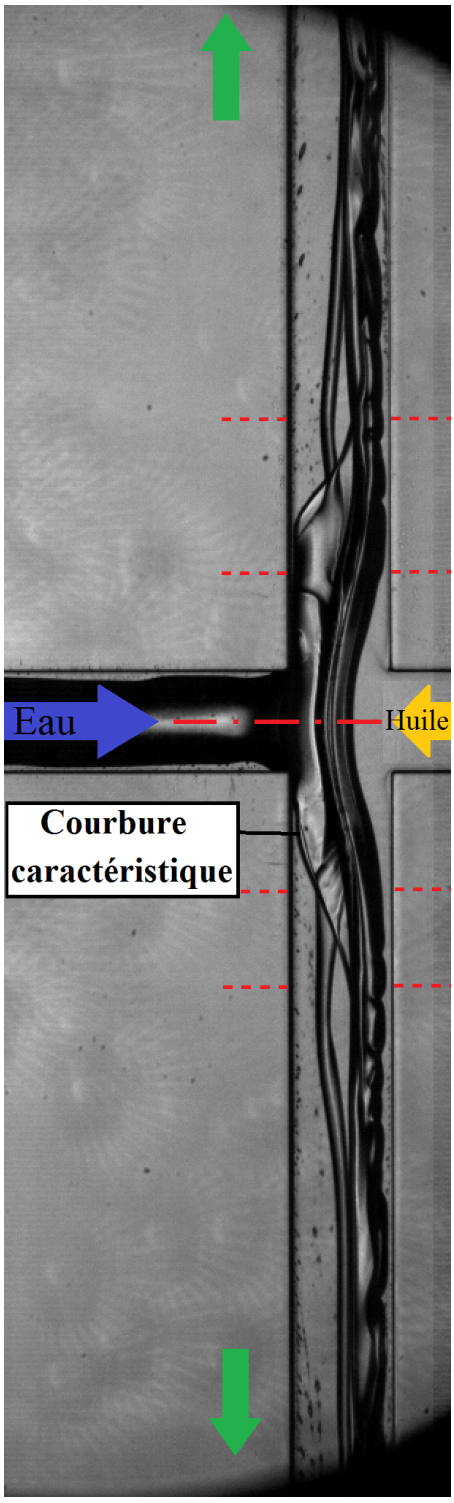


FIG. IV.6: Test 4 : Q_e=13,15 mL/min avec 0,1 % de Span83, d_{10}=21,89 μm.

IV.4 Diamètre hydraulique du canal d'eau réduit à 300 μm

Cette analyse concerne les micro-canaux "300-600" et "300-800" et le tableau IV.2 réunit les résultats des tests d'émulsification réalisés. Le débit d'huile est fixe [78 - 88] mL/min mais le

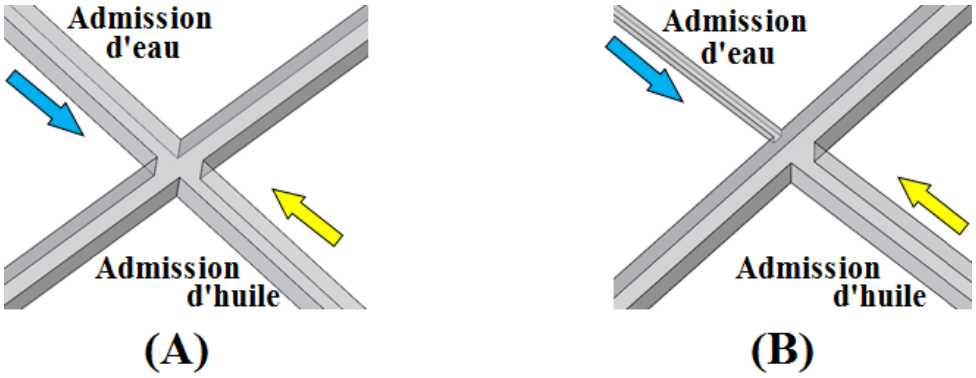


FIG. IV.7: Micro-canal en forme de croix : (A) à sections uniformes ("600-600"), (B) à marche variable.

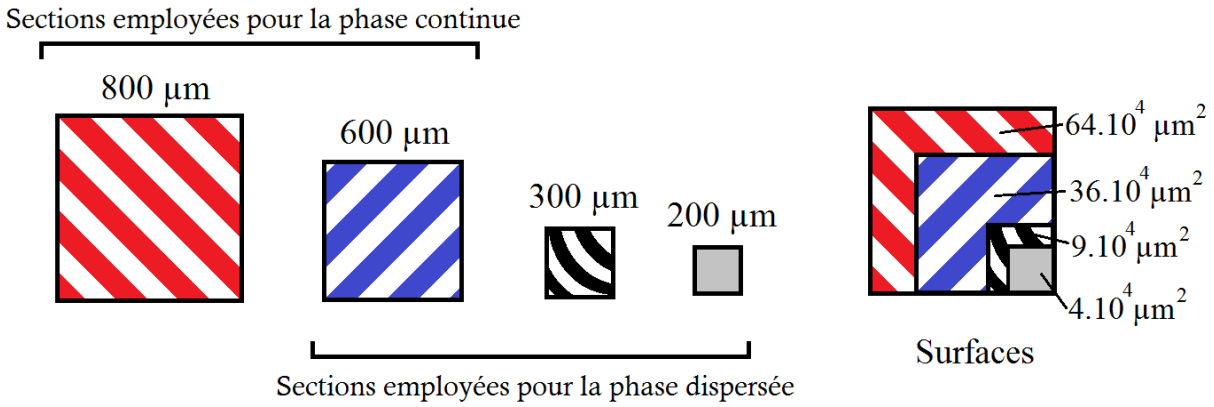


FIG. IV.8: Comparaison des sections de passage pour les différents canaux appartenant aux micro-canaux en croix expérimentés.

débit d'eau varie entre 4,95 et 16,81 mL/min et, par conséquent, la fraction volumique varie également entre 5,91 et 16,29 %.

Durant les expériences d'émulsification menées avec l'ensemble des micro-canaux, le débit de la phase continue (huile de tournesol) est gardé fixe. Avec une expression du nombre capillaire (Ca) qui dépend de la vitesse de l'émulsion dans le canal de sortie (voir l'équation (II.16), paragraphe §II.3.1(b)), on obtient un nombre capillaire relativement constant. A travers le micro-système "300-600", le nombre capillaire est de 7,0 ± 0,5 et à travers le micro-système "300-800", le nombre capillaire est de 3,5 ± 0,2. A travers le micro-système "300-600", le nombre de Reynolds varie entre 38 et 40 pour l'écoulement d'huile (l'écoulement est laminaire) et entre 547 et 1024 pour l'écoulement d'eau (l'écoulement est laminaire mais peut atteindre un régime de transition vers la turbulence). A travers le micro-système "300-800", le nombre de Reynolds varie entre 27 et 29 pour l'écoulement d'huile (Re_h) et entre 302 à 644 pour l'écoulement d'eau

	(Q_h ; Q_e) [mL.min^{-1}]	φ_e [%]	(P_h, P_e) [bar]	d_{10} [μm]	η_i/n_{min} [%]	$P(d_{10})$ [%]	Ca	Re	(Re_h ; Re_e)
0,1% Span83 - (μ_h = 52,2 $mPa.s$, $\gamma_{e/h}$ = 16,6 mN/m, k^{-1} = 3,57 mm)									
300-600	(82,08 ; 8,98)	9,86	(8 ; 4)	12,28	139	65	6,6	0,50	(38 ; 547)
	(87,57 ; 12,68)	12,65	(8 ; 5)	11,03	298	68	7,3	0,49	(40 ; 773)
	(86,37 ; 16,81)	16,29	(9 ; 4)	10,46	464	51	7,5	0,48	(40 ; 1024)
300-800	(78,75 ; 4,95)	5,91	(3,5 ; 3)	15,33	36	73	3,4	0,32	(27 ; 302)
	(80,2 ; 7,00)	8,03	(4,7 ; 4)	12,22	42	73	3,6	0,27	(28 ; 427)
	(80,41 ; 10,07)	11,13	(3,3 ; 3)	9,39	296	72	3,7	0,21	(28 ; 614)
	(83,87 ; 7,19)	7,90	(5 ; 4,5)	13,09	86	77	3,7	0,30	(29 ; 438)
	(79,96 ; 10,57)	11,68	(5,2 ; 4,5)	11,80	86	85	3,7	0,27	(28 ; 644)

TAB. IV.2: Données d'émulsification.

(Re_e). Ce qui permet de conclure sur un écoulement en régime laminaire, accompagné de quelques structures locales d'écoulement (enroulement de la phase dispersée ou "swirl").

⚠

Le nombre de Reynolds de la phase dispersée (Re_e) a peu d'influence sur la granulométrie dans le cas du micro-système "300-600" (le diamètre moyen d_{10} varie entre 10,46 et 12,28 μm). Par contre pour des Re_e importants, une sensibilité plus importante du micro-système "300-800" est constatée (le diamètre moyen d_{10} varie entre 9,39 et 15,33 μm).

Le nombre capillaire pour le micro-système "300-600" (Ca ≃ 7) est supérieur de 50 % à celui du "300-800" (Ca ≃ 3,5).

Les essais sont menés avec une fraction volumique d'eau dispersée (φ_e) qui demeure inférieure à 20 % .

IV.4.1 Visualisations des écoulements dans le micro-système "300-600"

Les visualisations réalisées sur le micro-système "300-600", en mode de fonctionnement, couvrent uniquement la zone d'impact (voir les figures IV.9 et IV.10). Trois cas de visualisations sont réalisés correspondant aux tests dont les conditions d'écoulement sont explicitées dans le tableau IV.2. Un seul paramètre varie durant ces acquisitions qui est le débit d'eau entre 8,98 mL/min et 16,81 mL/min. Sur le plan hydrodynamique, cela a une influence sur la phase dispersée. Dans le cas 1, représenté par la figure IV.9 on peut observer l'enroulement de la phase dispersée de forme bien cylindrique et lisse. Cet enroulement ou "swirl" est localisé dans

la moitié droite du canal d'émulsion, c'est-à-dire côté admission d'huile. Pour un débit d'eau plus important (Q_e=12,68 mL/min), on remarque l'apparition de perturbations sous forme d'ondulations en surface de cet enroulement de phase dispersée. Ce phénomène est pourtant sans incidence sur la taille moyenne des gouttelettes.

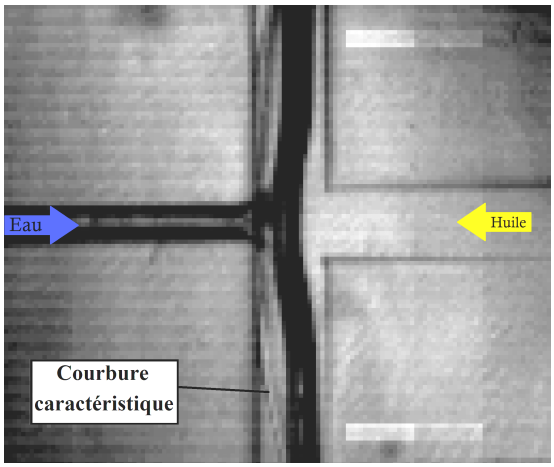


FIG. IV.9: Micro-canal "300-600", Q_e = 8,98 mL/min, d_{10} = 8,18 μm.

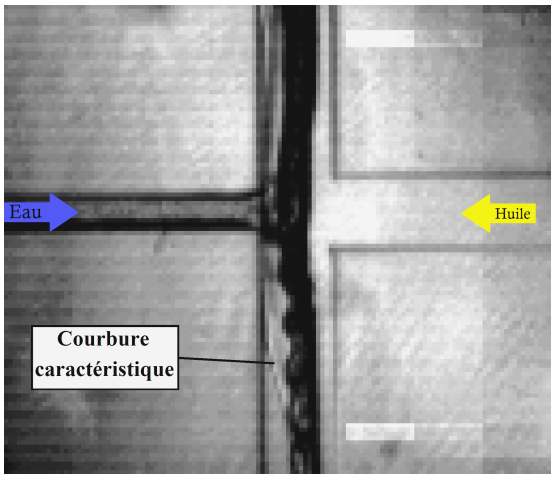


FIG. IV.10: Micro-canal "300-600", Q_e = 12,68 mL/min, d_{10} = 8,07 μm.

IV.4.2 Visualisations des écoulements dans le micro-système "300-800"

Pour le micro-système "300-800", les visualisations sont réunies les figures IV.11, IV.12, IV.13, IV.14 et IV.15. Cinq cas de visualisations sont représentés dont les conditions d'écoulement sont explicitées sur le tableau IV.2. L'unique paramètre varié durant ses acquisitions est le débit d'eau entre 4,95 mL/min et 10,57 mL/min. Les influences sur le plan hydrodynamique sont comme suit : pour un faible débit d'eau (Q_e=4,95 mL/min), se forme ce "swirl" caractéristique dont la largeur est plus fine (1/5 de Dh avec Dh=800μm) en comparaison avec les observations précédentes (voir la figure IV.11). Cela est dû principalement à un faible débit d'eau combiné à un canal de formation de l'émulsion plus large (Dh=800μm). A mesure que le débit est augmenté, le "swirl" caractéristique et de couleur sombre augmente de diamètre. **La couleur sombre de la phase dispersée s'expliquant par de la diffusion multiple, indicateur d'une phase dispersée déjà fractionnée.**

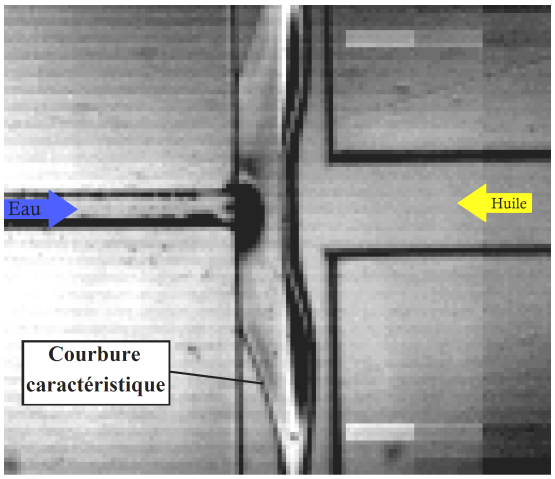


FIG. IV.11: Micro-canal "300-800", Q_e = 4,95 mL/min, d_{10}=15,33μm.

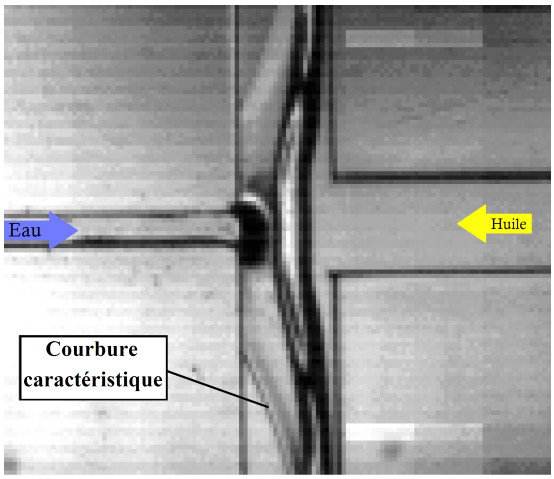


FIG. IV.12: Micro-canal "300-800", Q_e = 7,00 mL/min, d_{10}=12,22μm.

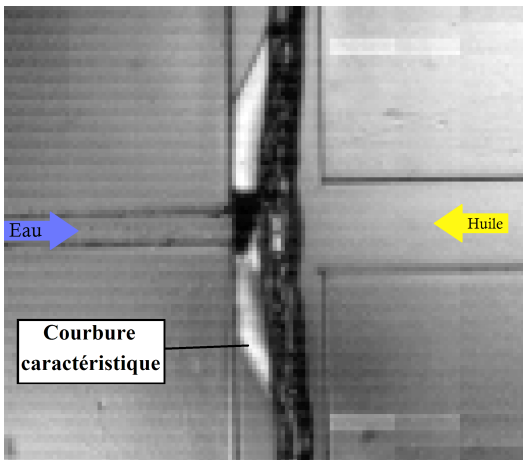


FIG. IV.13: Micro-canal "300-800", Q_e = 10,07 mL/min, d_{10}=9,39μm.

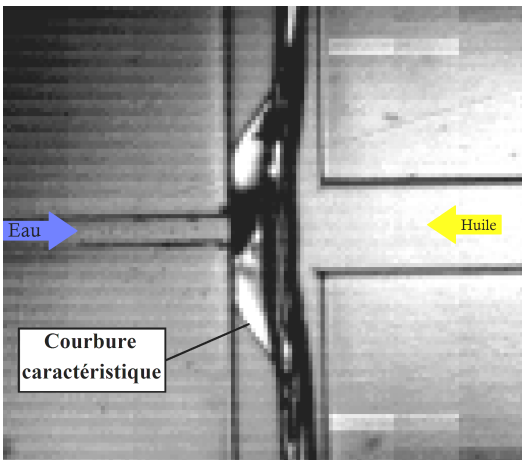


FIG. IV.14: Micro-canal "300-800", Q_e = 7,19 mL/min, d_{10}=13,09μm.

IV.5 Diamètre hydraulique du canal d'eau réduit à 200 μm

Dans cette section, on analyse les deux micro-canaux "200-600" et "200-800" dont les résultats des tests d'émulsification réalisés sont réunis sur le tableau IV.3.

Pour ces micro-canaux "200-600" et "200-800", le débit d'huile est maintenu fixe (83 mL/min ±4 mL/min). Le débit d'eau est varié entre 4,9 et 19,79 mL/min pour une fraction volumique comprise entre 5,31 et 20,41 %.

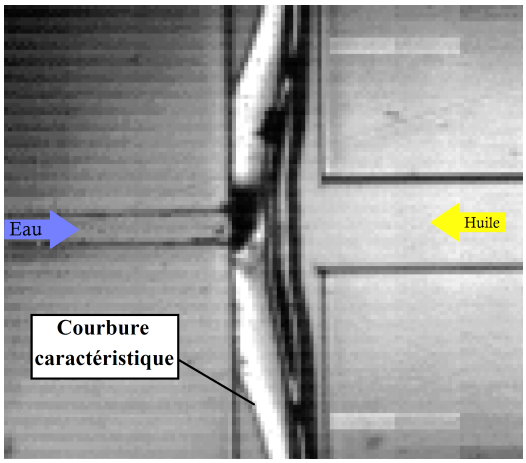


FIG. IV.15: Micro-canal "300-800", Q_e = 10,57 mL/min, d_{10}=11,80μm.

⚠

On conclut que les nombres capillaires du micro-système "200-600" et ceux du "300-600" sont du même ordre de grandeur Ca ≃ 7. En ce qui concerne les micro-canaux "200-800" et "300-800" les nombres capillaires sont l'ordre de 3,5.

Une influence importante sur la granulométrie du micro-système "200-600" est constatée pour des nombres de Reynolds d'eau (Re_e) importants (d_{10} varie entre 10,1 et 21,17 μm). En revanche Re_e avait peu d'influence sur la granulométrie dans le cas du le micro-système "200-800" (d_{10} varie entre 12,76 et 14,31 μm).

Les essais sont menés avec une fraction volumique de l'eau dispersée (φ_e) qui demeure inférieure à 20 %, un seul cas seulement a atteint 20,41 %.

IV.5.1 Visualisations des écoulements dans le micro-système "200-600"

Les visualisations réalisées sur le micro-système "200-600", en mode de fonctionnement, qui couvrent la zone d'impact sont affichées sur les figures IV.16 et IV.17. Pour de faibles débits (Q_e=6,8 mL/min et Q_e=9,98 mL/min), il se forme ce "swirl" caractéristique de phase dispersée d'une largeur de Dh/2, avec Dh=600μm. Pour les deux débits mentionnés plus haut, le "swirl" d'un aspect bien cylindrique et lisse se positionne proche de la paroi côté admission d'huile (côté droit, voir les figures IV.16 et IV.17).

	(Q_h ; Q_e) [mL.min^{-1}]	φ_e [%]	(P_h; P_e) [bar]	d_{10} [μm]	η_i/n_{min} [%]	$P(d_{10})$ [%]	Ca	Re	(Re_h ; Re_e)
0,1% Span83 - (μ_h = 52,2 $mPa.s$, $\gamma_{e/h}$ = 16,6 mN/m, k^{-1} = 3,57 mm)									
200-600	(87,35 ; 4,9)	5,31	(10,5 ; 6)	21,17	48	92	6,7	0,86	(40 ; 448)
	(85,43 ; 6,8)	7,38	(10,5 ; 6,5)	18,18	57	99	6,7	0,74	(39 ; 622)
	(65,1 ; 9,98)	13,32	(11 ; 7)	12,42	441	49	5,5	0,41	(30 ; 914)
	(79,09 ; 14,25)	14,32	(11 ; 7)	13,01	491	49	6,7	0,53	(36 ; 1208)
	(85,53 ; 17,02)	16,62	(11 ; 7)	10,1	179	79	7,5	0,46	(39 ; 1558)
200-800	(79,27 ; 4,91)	5,83	(4 ; 4,5)	14,31	122	75	3,5	0,30	(27 ; 449)
	(81,25 ; 6,77)	7,69	(4,5 ; 4,5)	13,98	165	52	3,6	0,31	(28 ; 619)
	(80,32 ; 9,1)	10,18	(4,5 ; 5)	13,87	122	59	3,7	0,31	(28 ; 832)
	(80,95 ; 14,65)	15,32	(5,5 ; 5)	12,43	97	89	3,9	0,30	(28 ; 1339)
	(77,18 ; 19,79)	20,41	(5 ; 5)	12,76	239	86	4,0	0,31	(27 ; 1809)

TAB. IV.3: Données d'émulsification.

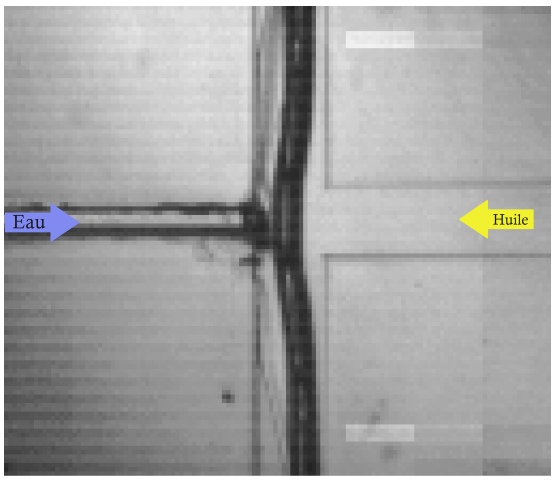


FIG. IV.16: Micro-canal "200-600", Q_e = 6,8 mL/min et d_{10}=18,18μm.

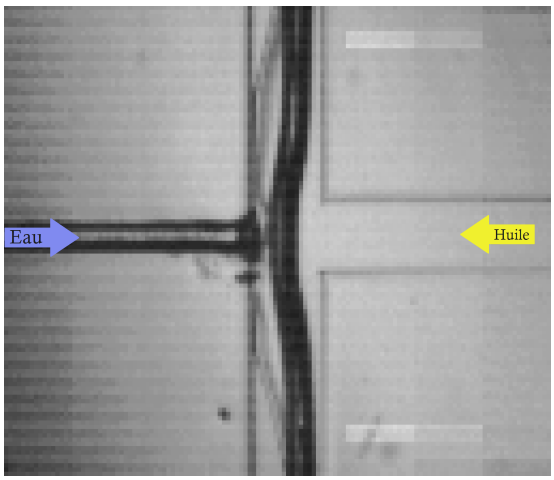


FIG. IV.17: Micro-canal "200-600", Q_e = 9,98 mL/min et d_{10}=12,42μm.

IV.5.2 Visualisations des écoulements dans le micro-système "200-800"

Pour le micro-système "200-800", le canal d'huile et les canaux de sortie de l'émulsion possèdent une section de 800μm x 800μm. Dans ce cas de figure on remarque très distinctement la formation de cette courbure de forme caractéristique à gauche (côté canal d'admission de l'eau) de l'enroulement de la phase dispersée côté canal d'admission d'huile.

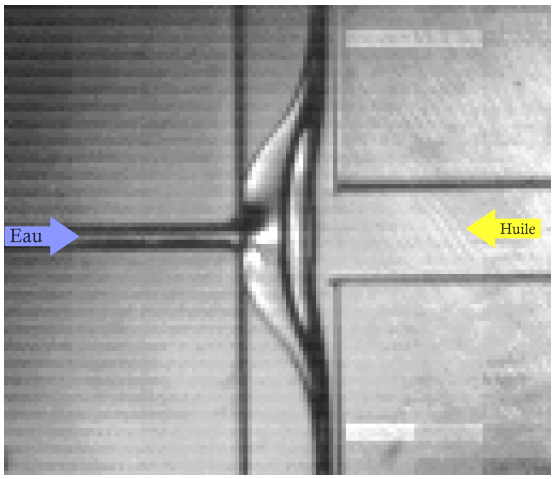


FIG. IV.18: Micro-canal "200-800", Q_e = 3,14 mL/min et d_{10}=18,23μm.

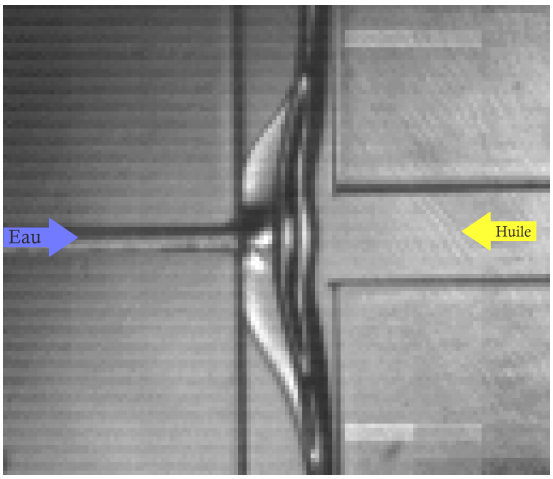


FIG. IV.19: Micro-canal "200-800", Q_e = 5,02 mL/min et d_{10}=17,92μm.

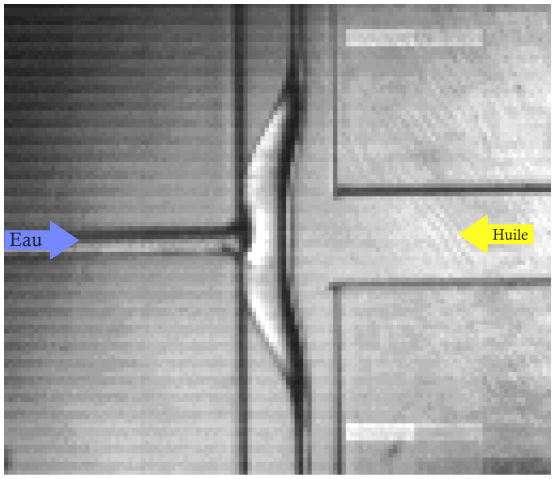


FIG. IV.20: Micro-canal "200-800", Q_e = 4,73 mL/min et d_{10}=12,82μm.

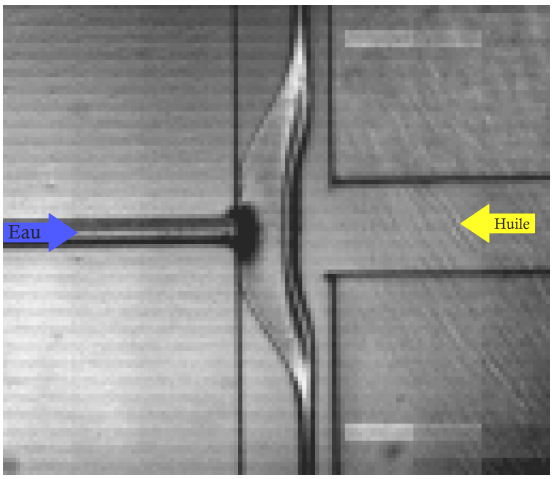


FIG. IV.21: Micro-canal "200-800", Q_e = 9,57 mL/min et d_{10}=11,14μm.

IV.6 Comparaison des résultats d'émulsification des micro-canaux

Cette dernière partie du présent chapitre est une récapitulation de l'ensemble des résultats d'émulsification (granulométries, pressions, débits,etc.) obtenus par les instrumentations des micro-canaux testés. Après une analyse qualitative menée à l'aide des visualisations à haute fréquence, cette partie vise à établir une comparaison quantitative de la performance du processus de fractionnement.

IV.6.1 Comparaison à l'aide du critère des pressions relatives

Les pressions relatives (par rapport à la pression atmosphérique) d'admission d'huile de tournesol (P_h) et de l'eau (P_e) sont représentées respectivement sur les figures IV.22 et IV.23.

Chaque zone délimitée par un trait discontinu indique une zone de points expérimentaux affectée à un seul micro-système et chaque micro-système adopte une couleur différente.

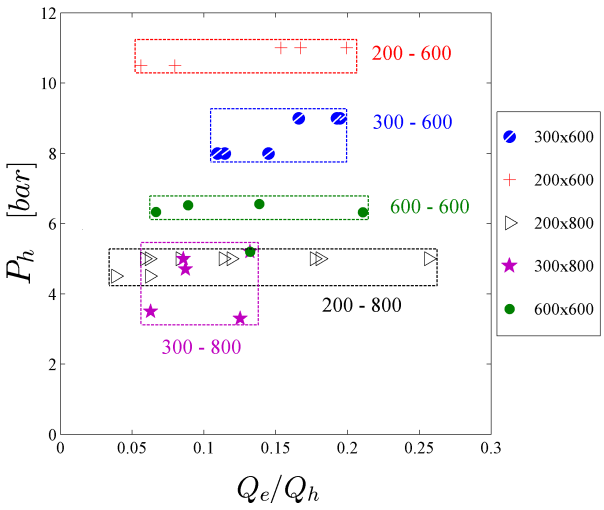


FIG. IV.22: Pression relative de l'huile.

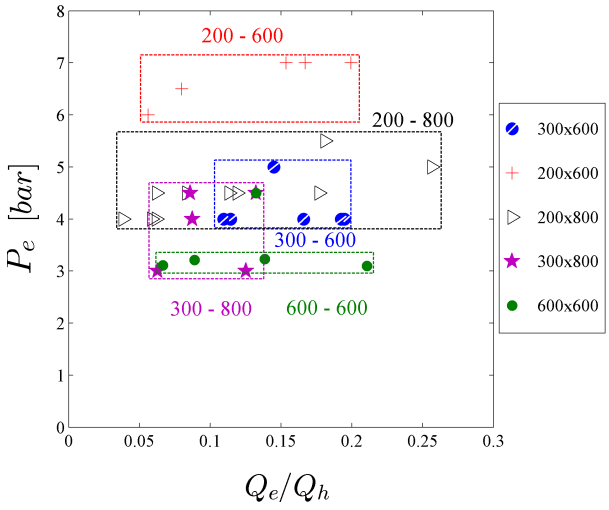


FIG. IV.23: Pression relative de l'eau.

⚠

Une comparaison peut être établie avec des macro-conduites en terme de pertes de pressions. En effet, on retrouve ici les propriétés des macro-conduites dont les pertes de charges "$\Delta H = \lambda \frac{L\, v^2}{Dh\, 2\, g}$" augmentent avec la diminution du diamètre hydraulique (Dh) de la conduite pour une rugosité "λ" et une longueur de conduite fixe "L" et l'effet inverse est également vérifié. Ceci est particulièrement vérifié pour l'huile (voir la figure IV.22). On constate que les pressions relatives mesurées à l'entrée sont d'autant plus importantes que le diamètre hydraulique Dh est faible.

On remarque également une influence du diamètre hydraulique de l'eau (Dh_{eau}) puisque, sur cette même figure IV.22, on retrouve en tête des chutes de pression le micro-système possédant les deux Dh les plus faibles c'est à dire le micro-système "200-600". Ensuite, c'est le micro-système "300-600", micro-système "600-600", micro-système "200-600" et enfin le "300-800" possédant le Dh_{huile} le plus important et un Dh_{eau} dans la moyenne.

IV.6.2 Comparaison sur la base du critère de la granulométrie des émulsions obtenues

Dans cette partie de l'analyse, nous nous intéressons aux résultats finaux de l'émulsification c'est-à-dire la granulométrie résultant de l'ensemble des micro-canaux. La figure IV.24 affiche le diamètre moyen porté en ordonnées et le nombre capillaire porté en abscisses. On retrouve,

cette répartition en deux groupes distincts. A gauche les micro-canaux "200-800" et "300-800" et à droite les micro-canaux : "300-600" et "200-600". Le "600-600" se retrouve dans la gamme médiane des nombres capillaires par rapport aux autres micro-canaux. Comme explicité plus haut la consigne d'huile étant maintenue inchangée pour l'ensemble des micro-canaux, la vitesse de la phase continue est alors plus importante lorsque la section du canal de celle-ci et de celle des canaux d'émulsions sont réduits.

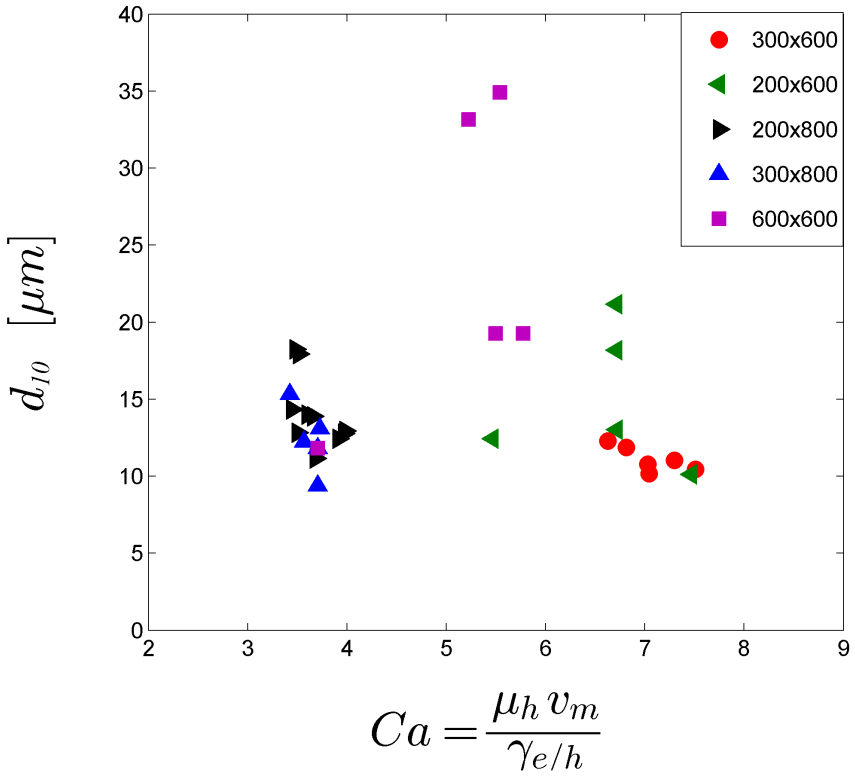


FIG. IV.24: Influence du nombre capillaire sur la granulométrie de dispersion.

Ayant intégré que la finalité du procédé étudié ici est de fractionner aussi finement que possible des gouttelettes d'eau, à travers la figure figure IV.24 se distinguent le "300-800" et le "300-600". Il est également nécessaire pour un fractionnement fin des gouttelettes de générer un écoulement cisaillant et par ailleurs une vitesse d'écoulement importante de la phase continue accentue le travail de cisaillement. D'après ces considérations, le micro-système "300-600" est le mieux adapté, avec un nombre capillaire deux fois plus important, il possède un potentiel de fractionnement liquide-liquide nettement plus important.

⚠

On conclut de cette confrontation de l'ensemble des micro-canaux établie sur la base de la granulométrie obtenue en fonction du nombre capillaire, que le micro-système "300-600" possède les avantages nécessaires à l'application visée. Les résultats du micro-système "300-600" offrent un diamètre moyen de dispersion entre 10 et 12 μm pour un potentiel de fractionnement par un écoulement cisaillant important. Afin de confirmer ce résultat un autre critère est développé ci-dessous.

IV.6.3 Critère de choix pour le micro-système adapté à l'émulsification

En raison de ces dimensions différentes, l'écoulement à jets impactants peut être amené à connaitre des variations notamment de la forme de l'enroulement de la phase dispersée ou encore de la courbure de forme caractéristique formée par l'admission de l'eau dans la zone d'impact. On prévoit que la survenue d'une recirculation en "swirl", vers le bas de l'entrée d'eau, aura pour effet d'augmenter la courbure des lignes de courant et d'augmenter par conséquent le fractionnement liquide-liquide induit par cisaillement.

Comme mentionné auparavant, on dispose de cinq dimensions différentes de micro-canaux pour lesquels les tests pratiqués sont réunis dans le tableau IV.4. Afin de comparer pertinemment et surtout de distinguer le micro-système le plus performant pour le présent procédé d'émulsification, un critère physique est introduit dans le but de confronter l'effet des différentes dimensions de micro-canaux sur le fractionnement. Ce critère physique noté "F_γ", désigne la force nécessaire à la cohésion de la dispersion eau dans huile, dont l'expression mathématique est explicitée ci-dessous :

$$F_\gamma = 24\ \varphi_e\ \gamma_{e/h}\ \frac{d_{10}}{\bar{d^3}} \tag{IV.1}$$

Avec :

- F_γ : force de cohésion [N.m^{-3}],
- φ_e : fraction volumique de l'eau en [%], avec $\varphi_e = \frac{Q_e}{Q_h+Q_e}$,
- $\gamma_{e/h}$: tension inter-faciale [N/m],
- d_{10} : moyenne arithmétique des diamètres des gouttelettes [μm],
- $\bar{d^3}$: moyenne arithmétique du diamètre au cube des gouttelettes [m^3].

La force F_γ est homogène à une force appliquée sur un volume. Elle est obtenue par le produit du nombre de gouttelettes d'eau supposées sphériques (car leur diamètre est très inférieur à la longueur capillaire k^{-}1) et contenues dans la quantité d'eau dispersée (φ_e), donné par la formule : n = $\frac{\varphi_e}{\bar{d}^3\ \pi/6}$ et la force capillaire : 4 π d_{10} $\gamma_{e/h}$ responsable du maintien de la sphéricité des gouttelettes [Quéré, 2012]. Sur le plan de la physique, la force F_γ désigne une force volumique de cohésion, indispensable au système d'émulsification pour la génération de gouttelettes dont le volume est considéré sphérique.

	(Q_h ; Q_e) [mL.min^{-1}]	φ_e [%]	(P_h, P_e) [bar]	d_{10} [μm]	$\bar{d}^3$ [$10^{-15}\ m^3$]	F_γ [$10^7\ N.m^{-3}$]
0,1% Span83 - (μ_h = 52,2 $mPa.s$, $\gamma_{e/h}$ = 16,6 mN/m, k^{-1} = 3,57 mm)						
600-600	(67,31 ; 4,48)	6,24	(6,33 ; 3,11)	33,16	221,30	0,37
	(69,91 ; 6,21)	8,15	(6,52 ; 3,21)	34,92	149,49	0,76
	(69,68 ; 9,65)	12,17	(6,56 ; 3,23)	19,24	27,57	3,38
	(62,39 ; 13,15)	17,41	(6,32 ; 3,10)	21,89	56,30	2,70
300-600	(82,08 ; 8,98)	9,86	(8 ; 4)	12,28	4,77	10,08
	(87,57 ; 12,68)	12,65	(8 ; 5)	11,03	4,10	14,05
	(86,37 ; 16,81)	16,29	(9 ; 4)	10,46	2,17	31,23
300-800	(78,75 ; 4,95)	5,91	(3,5 ; 3)	15,33	11	3,28
	(80,2 ; 7,00)	8,03	(4,7 ; 4)	12,22	6,26	6,23
	(80,41 ; 10,07)	11,13	(3,3 ; 3)	9,39	2,57	16,20
	(83,87 ; 7,19)	7,90	(5 ; 4,5)	13,09	7,59	5,43
	(79,96 ; 10,57)	11,68	(5,2 ; 4,5)	11,80	7,01	7,83
200-600	(87,35 ; 4,9)	5,31	(10,5 ; 6)	21,17	54,24	0,83
	(85,43 ; 6,8)	7,38	(10,5 ; 6,5)	18,18	40,79	1,31
	(65,1 ; 9,98)	13,32	(11 ; 7)	12,42	3,61	18,23
	(79,09 ; 14,25)	14,32	(11 ; 7)	13,01	4,15	19,11
	(85,53 ; 17,02)	16,62	(11 ; 7)	10,1	4,27	15,62
200-800	(79,27 ; 4,91)	5,83	(4 ; 4,5)	14,31	10,10	3,29
	(81,25 ; 6,77)	7,69	(4,5 ; 4,5)	13,98	5,35	8,02
	(80,32 ; 9,1)	10,18	(4,5 ; 5)	13,87	5,96	9,46
	(80,95 ; 14,65)	15,32	(5,5 ; 5)	12,43	10,02	7,56
	(77,18 ; 19,79)	20,41	(5 ; 5)	12,76	10,37	10,03

TAB. IV.4: Données d'émulsification.

Une observation des valeurs de la force "F$_\gamma$" qui sont consignées dans le tableau IV.4 et présentées sur la figure IV.25 montre que le micro-système "300-600" est plus avantageux que les autres micro-systèmes. Il est suivi de près par le micro-système "200-800". Le micro-système

pour lequel la force "F_γ" est la plus faible est le micro-système à sections uniformes ("600-600"). La comparaison est établie sur la base des trois gammes de débits dont nous disposons sur le micro-système "300-600". Si on se réfère à la courbe de tendance de chaque micro-système (voir la figure IV.25), on remarque clairement l'importance de la force volumique développée par le micro-système "300-600", à des fractions d'eau généralement plus importante, par rapport aux autres sur une gamme de "φ_e" allant de 10 à 17 %. Ce qui signifie que le "300-600" est le plus performant en terme de fractionnement. Le micro-système "600-600" génère la force volumique la plus faible .

★ **N.B. : Le micro-système "200-600" a été écarté en raison de pertes de pressions (voir le paragraphe § IV.6.1) et d'un comportement erratique laissant craindre une instabilité du régime d'écoulement. Sur un plan énergétique, on ne peut consentir à de telles dépenses sachant qu'avec d'autres micro-canaux ("300-600" et "300-800" voir la figure IV.24) on obtient de meilleurs résultats de dispersion.**

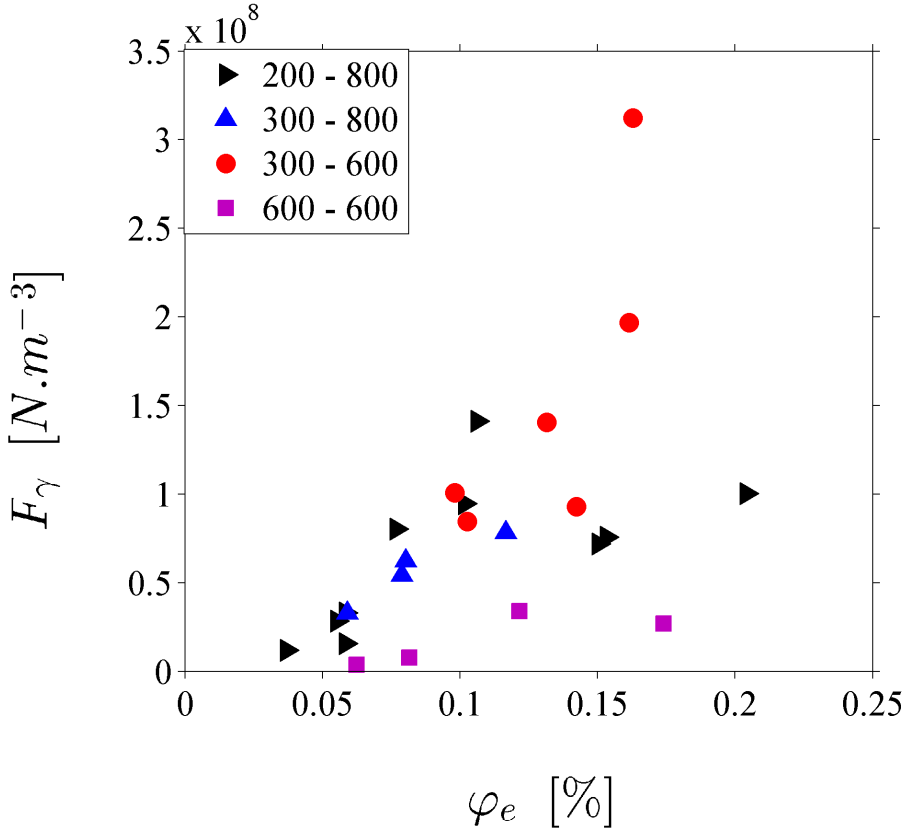


FIG. IV.25: Évolution de la force de cohésion exprimée par mètre cube d'eau en fonction de cette fraction volumique d'eau dispersée.

Deux grandeurs physiques supplémentaires sont introduites afin de permettre une com-

paraison pertinente sur le plan énergétique. La figure IV.26 exprime la surface crée par unité de volume d'émulsion crée en fonction de l'énergie dépensée par kilogramme d'émulsion produite. Cette figure est nécessaire afin de montrer quel micro-système génère le maximum d'interface tout en minimisant les dépenses énergétiques. Conformément au résultats obtenus précédemment le micro-système "200-600" demeure le plus énergivore. En comparaison avec les autres micro-canaux, le "200-600" génère une interface liquide-liquide pas très importante. Les micro-canaux "300-800" et "200-800" sont plus efficaces lorsque le débit d'eau dispersée est important. En revanche, pour une énergie consommée médiane le "300-600" offre un potentiel de génération d'interface eau-huile nettement meilleure y compris pour de faibles débit d'eau.

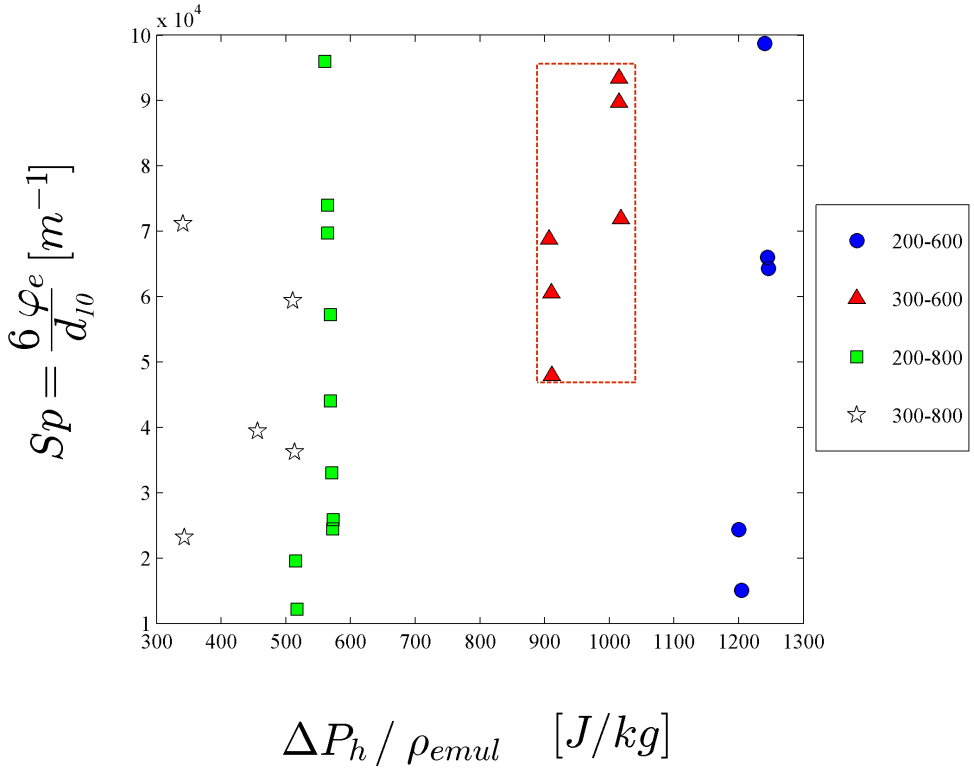


FIG. IV.26: Interface crée en fonction de l'énergie dépensée par unité de masse d'émulsion générée.

Ces observations se confirment lorsque l'on vient à tracer l'évolution du diamètre des gouttelettes d'eau dispersée en fonction du rapport de l'interface créée et de l'énergie dépensée par unité de masse d'émulsion produite (voir la figure IV.27). Malgré une production moyenne d'émulsion par unité de surface produite et par unité d'énergie consommée, le micro-système "300-600" demeure celui qui fractionne le mieux avec un diamètre moyen de dispersion "d_{10}" le plus faible.

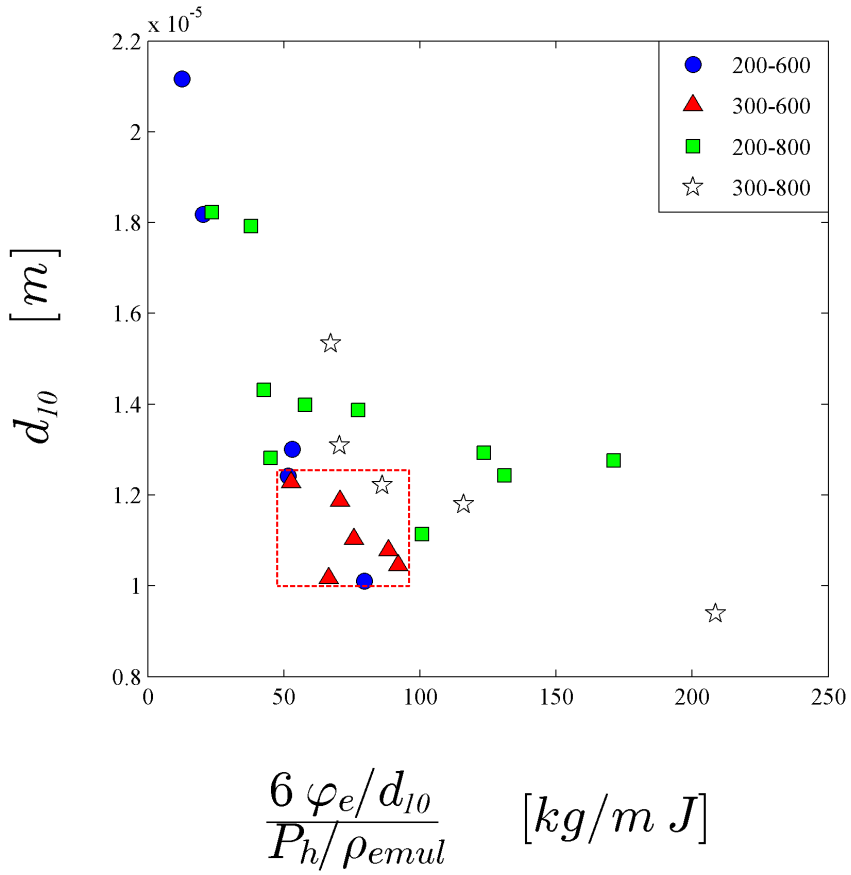


FIG. IV.27: Évolution du diamètre moyen d_{10} en fonction de la quantité d'émulsion produite par unité de surface d'émulsion et d'énergie dépensée.

IV.7 Conclusion

Ce chapitre s'est donné pour objectif de comparer cinq micro-canaux de différentes dimensions sur la base d'un travail d'émulsification visant à disperser des gouttelettes d'eau dans de l'huile de tournesol (émulsion de type eau dans huile). A partir du micro-système de référence "600-600", dit à sections uniformes, d'autres micro-canaux à section d'eau réduite, dits à "marche variable", ont été usinés à savoir : "300-600", "300-800", "200-600" et "200-800". Ils permettent de réduire la fraction volumique d'eau dispersée et d'instaurer un écoulement "enroulé" caractéristique ou "swirl" meilleur pour le fractionnement.

A l'issue des mesures de pression relative effectuées au niveau des admissions, on confirme l'influence du confinement sur les pertes de pression. La gamme des nombres capillaires (Ca) appliqués à travers nos micro-canaux est relativement élevée. D'ailleurs, la gamme des Ca appliquée représente 10 voire 1000 fois la gamme des Ca habituellement rencontrée dans la littérature scientifique comme explicité au paragraphe § II.4.4.

On conclut qu'un meilleur fractionnement se produit lorsque la section du canal d'eau est réduite, comparativement aux sections uniformes. Le diamètre moyen d_{10} est réduit de quasiment 50 %, atteignant 10 μm avec une fraction volumique d'eau de l'ordre de 10 à 20 %.

Pour une énergie consommée relativement faible, le micro-système "300-600" est celui qui maximise l'aire de l'interface eau-huile. Contrairement aux autres micro-canaux, cela est vérifié également pour un faible débit d'eau. Dans la continuité de la démarche d'optimisation globale du procédé, ce micro-système "300-600" fera l'objet d'une étude fine de l'influence des conditions intrinsèques ($\mu_{h,e}$, $\gamma_{e/h}$) et contextuelles (conditions-limites de vitesse de l'écoulement). Les résultats sont présentés au chapitre suivant.

Chapitre V

Étude expérimentale globale et in-situ de l'émulsification à travers le micro-canal "300-600"

Sommaire

V.1 Introduction 100

V.2 Procédé d'émulsification à travers le micro-canal "300-600" 101

V.2.1 Analyse des données d'émulsification à travers le "300-600" 101

V.2.2 Étude hydrodynamique de l'écoulement diphasique au croisement du "300-600" 104

V.2.3 Étude hydrodynamique de l'écoulement diphasique au niveau des sorties du "300-600" 108

V.3 Prise en compte des propriétés physiques par analyse dimensionnelle 113

V.4 Conservation de l'énergie mécanique en aval de la zone d'impact 117

V.5 Mesure de la lumière laser collectée à travers le micro-canal "300-600" 121

V.5.1 Méthode de post-traitement des données brutes 122

V.5.2 Conditions de mise en application de la lumière laser collectée à travers le micro-canal "300-600" 128

V.5.3 Visualisation à haute fréquence 131

V.5.4 Cartographies de lumière laser collectée 134

V.6 Conclusion 138

V.1 Introduction

Il est question dans le présent chapitre de détailler davantage l'analyse du procédé d'émulsification à travers le micro-canal "300-600". A l'issue du chapitre précédent, ce micro-canal a montré des caractéristiques qui sont en adéquation avec les applications visées par notre procédé de dispersion liquide-liquide. Dans un premier temps, cette étude du procédé d'émulsification est menée en faisant varier les paramètres suivants : la tension inter-faciale eau-huile ($\gamma_{e/h}$), le débit d'eau (Q_e) et la viscosité de la phase continue (μ_h). Le débit d'huile (Q_h = cste), et la viscosité de la phase dispersée (μ_e) seront maintenus constants.

Ajouté aux visualisations à haute fréquence au niveau du croisement, le présent chapitre s'intéresse également au canal d'émulsification et plus précisément à la zone de sortie du canal d'émulsion (zone couvrant une distance de 11 Dh, avec Dh = 600 μm, en amont de la sortie). Cela permet d'investiguer l'influence des paramètres d'écoulements sur cette structure hydrodynamique caractéristique du présent procédé d'émulsification par deux jets en impact.

Dans un second temps, l'ensemble de ces résultats de dispersion liquide/liquide obtenus à travers le micro-canal "300-600" sont combinés. Cette combinaison de paramètres est mise en œuvre lors de bilans de forces et/ou d'énergies mécaniques, ainsi que lors d'une analyse dimensionnelle au sein de ce micro-canal. A l'issue de cette démarche, les deux relations obtenues permettent de prédire un diamètre moyen de la dispersion par jets impactants confinés dans le micro-canal "300-600".

On s'intéresse également au principe de dispersion dans le micro-canal "300-600" à l'aide d'une étude expérimentale in-situ, sur quatre cas types d'écoulement. Il s'agit de la technique de collecte de la lumière laser qui emploie un faisceau laser focalisé à un diamètre compris entre 100 et 150 μm. Cela permet de réaliser des cartographies du rapport lumière incidente sur la lumière collectée (I_t / I_0) au niveau de la zone active du micro-canal c'est-à-dire au croisement et avec un maillage de 150 μm. Pour une meilleure compréhension de cet écoulement à jets impactants, les résultats issus de cette technique laser seront confrontés qualitativement aux apports des visualisations obtenues avec la caméra à haute fréquence, ainsi qu'aux phénomènes décrits dans la littérature scientifique.

V.2 Procédé d'émulsification à travers le micro-canal "300-600"

Les tableaux V.1 et V.2 réunissent l'ensemble des 38 essais d'émulsification qui ont été conduits en employant ce micro-canal. Comparativement au chapitre précédent, une grande majorité des paramètres physiques sont variés : la tension de surface ($\gamma_{e/h}$) en ajoutant l'émulsifiant Span83 ou du Butan-1-ol, la viscosité de la phase continue (μ_h) en ajoutant du Butan-1-ol, le débit de la phase dispersée (Q_e) à l'aide de la pompe et la masse volumique de la phase continue (ρ_h) en ajoutant aussi du Butane-1-ol comme pour les derniers tests. Dans cette partie du travail (chapitre V) uniquement la viscosité de la phase dispersée ($\mu_{eau} = 0,91\ mPa.s$) est maintenue fixe pour l'ensemble des tests. Le débit d'huile appliqué est maintenu fixe dans la mesure du possible à 71 mL/min ± 12 mL/min selon les tests. Au cours des test, le débit est fixe. La température des deux phases est évidemment maintenue fixe à 25 °C ± 1°C dans le but de maintenir constantes la tension inter-faciale et la viscosité dans le procédé.

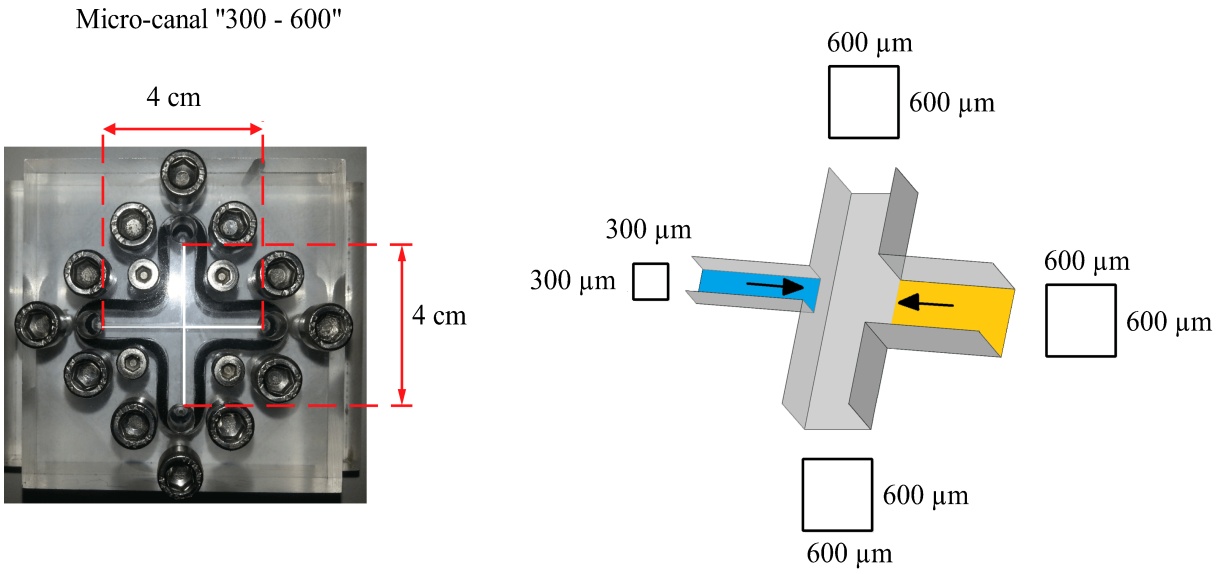


FIG. V.1: Micro-canal "300-600".

V.2.1 Analyse des données d'émulsification à travers le "300-600"

Les deux tableaux V.1 et V.2 affichent un débit d'huile comme explicité plus haut relativement fixe de 71 mL/min ± 12 mL/min. Le débit d'eau a été varié entre 3,43 et 14,82 mL/min. Les émulsions obtenues, de type eau dans huile (e/h), possèdent une fraction volumique d'eau dispersée (φ_e) comprise entre 4,54 et 17,15 %. Les nombres capillaires (Ca) forment des paliers correspondant chacun à une valeur de la tension inter-faciale. Au niveau de chaque palier le nombre capillaire est relativement fixe.

(Q_h ; Q_e) [mL.min^{-1}]	φ_e [%]	(P_h, P_e) [bar]	d_{10} [μm]	$d_{\overline{1/d}}$ [μm]	η_i/n_{min} [%]	$P(d_m)$ [%]	Ca	Re	(Re_h ; Re_e)
0% Span83 - $\mu_o = 52,2\,mPa.s$, $\gamma_{e/h} = 27,6\,mN.m^1$, $k^{-1} = 4,60mm$									
(72,18 ; 4,64)	6,04	(7 ; 3,3)	35,8	28,6	94	50,32	3,4	2,3	(33 ; 283)
(71,63 ; 4,66)	6,10	(7 ; 3,3)	26,2	19,8	104	60,8	3,3	1,7	(33 ; 284)
(74,08 ; 6,64)	8,23	(7 ; 3,3)	32,2	25,5	117	52,74	3,5	2,1	(34 ; 405)
(72,90 ; 6,64)	8,35	(6,9 ; 3,2)	31,7	23,1	126	60,63	3,5	2,0	(34 ; 405)
(73,99 ; 9,74)	11,63	(6,9 ; 3,4)	32,7	26,1	400	48,94	3,7	2,1	(34 ; 593)
(73,05 ; 8,95)	10,92	(6,8 ; 3,3)	37,8	31	388	45,55	3,6	2,4	(34 ; 546)
(70,89 ; 14,67)	17,15	(7,3 ; 3,7)	34,5	25,8	580	52,65	3,7	2,2	(33 ; 894)
(71,53 ; 14,58)	16,93	(7,1 ; 3,6)	31,2	24,3	706	53,82	3,8	2,0	(33 ; 888)
0,1% Span83 - $\mu_o = 52,2\,mPa.s$, $\gamma_{e/h} = 16,6\,mN.m^1$, $k^{-1} = 3,57mm$									
(70,39 ; 3,74)	5,04	(7 ; 3,4)	26,4	19	387	58,77	5,4	1,6	(32,4 ; 228)
(71,32 ; 3,76)	5,01	(6,9 ; 3,3)	26	18,2	201	62,96	5,5	1,6	(33 ; 229)
(68,26 ; 4,17)	5,76	(7,4 ; 3,5)	24	16,5	438	62,6	5,3	1,5	(31 ; 254)
(70,72 ; 5,43)	7,13	(7,3 ; 3,5)	28,8	19	453	67,53	5,5	1,8	(33 ; 331)
(72,48 ; 10,37)	12,52	(6,9 ; 3,4)	18,4	12,5	166	78,44	6,0	1,2	(33 ; 632)
(73,15 ; 9,76)	11,77	(6,8 ; 3,4)	19	15,5	307	45,93	6,0	1,2	(34 ; 595)
(71,29 ; 14,48)	16,88	(6,8 ; 3,2)	17,5	11,9	354	70,95	6,2	1,1	(33 ; 882)
(71,75 ; 14,82)	17,12	(7,2 ; 3,6)	18,9	13,1	646	67,7	6,3	1,2	(33 ; 903)
0,3% Span83 - $\mu_o = 52,2\,mPa.s$, $\gamma_{e/h} = 11,7\,mN.m^1$, $k^{-1} = 2,99mm$									
(69,63 ; 5,23)	6,99	(11,9 ; 3,1)	20	15	486	57,18	7,7	1,2	(32 ; 319)
(68,20 ; 5,38)	7,32	(12,1 ; 3,5)	16,9	13,2		52,58	7,6	1,0	(31 ; 328)
0,4% Span83 - $\mu_o = 52,2\,mPa.s$, $\gamma_{e/h} = 10,4\,mN.m^1$, $k^{-1} = 2,82mm$									
(72,18 ; 3,43)	4,54	(11,6 ; 3,1)	21,7	15,9	399	54,2	8,8	1,4	(33 ; 209)
(71,44 ; 3,52)	4,70	(11,5 ; 3,1)	23,4	17,9	607	51,9	8,7	1,5	(33 ; 214)
(70,79 ; 6,11)	7,94	(9 ; 3,4)	24,9	18,3	423	66,82	8,9	1,6	(33 ; 372)
(71,82 ; 5,88)	7,57	(9,1 ; 3,4)	28,3	20,6	518	58,18	9,0	1,8	(33 ; 358)
(55,21 ; 8,99)	14,01	(7,8 ; 3,6)	17,8	12,1	228	79,16	7,5	0,9	(25 ; 548)
(69,30 ; 8,78)	11,25	(13 ; 3,4)	18,9	12,7	295	72,65	9,1	1,2	(32 ; 535)
(70,17 ; 8,28)	10,56	(11,8 ; 3,2)	14	12,1	1290	38,00	9,1	0,9	(32 ; 505)
(70,99 ; 8,83)	11,06	(11,6 ; 3,2)	25,5	20,3	292	46,32	9,3	1,6	(33 ; 538)
(63,46 ; 12,63)	16,60	(6,5 ; 3)	19,3	15,1	786	56,57	8,8	1,1	(29 ; 770)
(69,68 ; 12,83)	15,55	(6,8 ; 3)	15,7	13,3	1690	44,65	9,6	1,0	(32 ; 782)
0,8% Span83 - $\mu_o = 52,2\,mPa.s$, $\gamma_{e/h} = 3,8\,mN.m^1$, $k^{-1} = 2,35mm$									
(69,64 ; 5,55)	7,38	(9,5 ; 3,2)	13,3	9,33	291	71,44	23,9	0,8	(32 ; 338)
(68,47 ; 5,62)	7,58	(9,2 ; 3,3)	15,3	12,94	526	42,24	23,6	0,9	(32 ; 342)

TAB. V.1: Tests réalisés sur le micro-canal 300 x 600 μm (1/2)

(Q_h ; Q_e) [mL.min^{-1}]	φ_e [%]	(P_h, P_e) [bar]	d_{10} [μm]	$d_{\overline{1/d}}$ [μm]	η_i/n_{min} [%]	$P(d_m)$ [%]	Ca	Re	(Re_h ; Re_e)
5% Butanol - μ_o = $40,4\,mPa.s$, $\gamma_{e/h}$ = $12,8\,mN.m^1$, k^{-1} = $3,13mm$									
(73,99 ; 13,25)	17,22	(5,3 ; 2,9)	23,7	12,6	316	94,27	6,5	1,6	(34 ; 807)
(78,16 ; 13,91)	17,13	(5,2 ; 2,8)	23,3	15,4	616	67,58	6,9	1,6	(36 ; 847)
13% Butanol - μ_o = $30,5\,mPa.s$, $\gamma_{e/h}$ = $5,4\,mN.m^1$, k^{-1} = $2,03mm$									
(73,24 ; 13,46)	17,63	(3,7 ; 2,2)	15,6	12,9	2470	40,45	11,6	1,0	(34 ; 820)
(73,98 ; 13,41)	17,43	(3,7 ; 2,2)	17,9	12,8	763	75,28	11,7	1,2	(34 ; 817)
(81,73 ; 13,18)	15,81	(4,2 ; 2,4)	13,7	10,9	915	47,19	12,7	1,0	(38 ; 803)
(81,74 ; 14,17)	16,80	(4,2 ; 2,5)	9,8	8,6	1320	39,09	12,8	0,7	(38 ; 863)
(92,07 ; 13,13)	14,24	(4,7 ; 2,7)	12,9	10,4	947	46,28	14,0	1,1	(42 ; 800)
(91,75 ; 13,10)	14,26	(4,7 ; 2,7)	11,9	9,9	1200	41,07	14,0	1,0	(42 ; 798)

$*$ En supposant que la viscosité dynamique de l'huile de tournesol μ_o avec 0,3-0,8 % en masse de Span83 reste inchangée.

TAB. V.2: Tests réalisés sur le micro-canal 300 x 600 μm (2/2)

Concernant le nombre de Reynolds "Re" (défini par l'équation II.15, voir le paragraphe § II.4.1), on remarque également la formation de paliers, chacun représente une valeur de la tension de surface. En effet, la tension de surface agit sur le nombre de Reynolds en influençant sur le diamètre moyen d_{10} de la dispersion. On constate également que le Butan-1-ol possède une influence simultanément sur la masse volumique de la phase continue et sur la tension inter-faciale, tel qu'avec 5 % de Butan-1-ol Re = 1,6 et pour 13 % de Butan-1-ol Re = 0,7 - 1,2. **On conclut qu'à mesure que la teneur d'émulsifiant Span83 ou de Butan-1-ol augmente dans la phase continue ce nombre de Reynolds diminue. Du fait de l'affinement du diamètre de la dispersion d_{10}, cela se traduit par une augmentation des forces visqueuses appliquées par la phase continue ($\frac{\mu_c\, v_c}{d_{10}}\ S_{emul}$) par rapport aux forces inertielles ($\rho_d\ v_c^2\ S_{emul}$) du fluide dispersé.**

L'influence du nombre capillaire sur le diamètre moyen est représentée sur la figure V.2. Le nombre capillaire intègre la vitesse débitante de l'eau et de l'huile de tournesol c'est-à-dire la vitesse débitante de l'émulsion (voir le paragraphe § II.4.1-(b)). Un diamètre maximal moyen (d_{10}) de la dispersion eau dans huile est observé, à partir duquel il décroit linéairement en fonction du nombre capillaire. Bien que le rapport de viscosité (p = μ_e/μ_h) soit variable pour les tests réalisés, cette tendance générale s'explique qualitativement par l'équation V.1 énoncée par [Habchi *et al.*, 2009] et [Grace, 1982] pour des gouttes d'eau en cours de fractionnement dans un écoulement laminaire de l'huile, où "$\mu_h\,\dot{\gamma}$" exprime la contrainte de cisaillement visqueux. Bien que certaines structures d'écoulement locales apparaissent (voir les figures V.3,V.6

et V.7), le nombre de Reynolds dans le canal d'émulsification est très bas (Re < 3) suggérant l'établissement d'un écoulement laminaire .

$$d_{10} \leq \alpha_p \left(\frac{2\,\gamma_{e/h}}{\mu_h\,\dot{\gamma}} \right) \tag{V.1}$$

avec :

– α_p : est le facteur de proportionnalité.

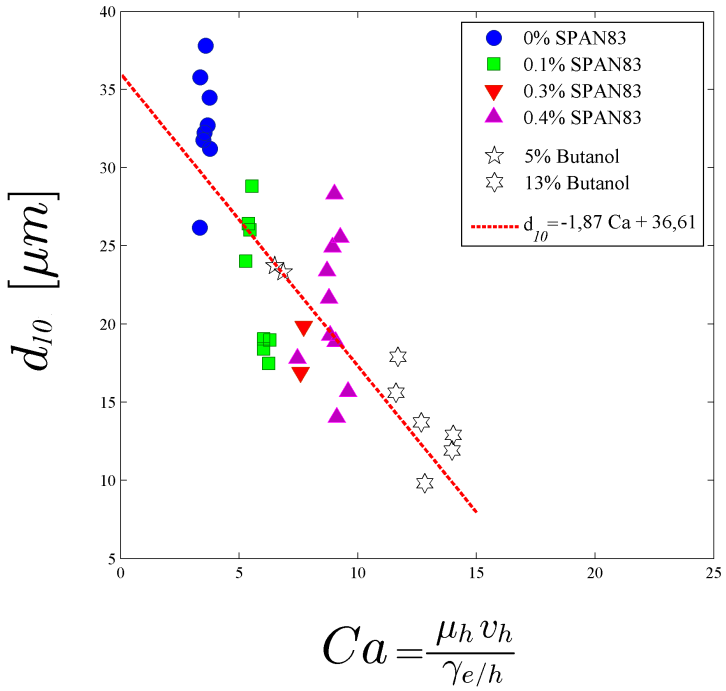


FIG. V.2: Le diamètre moyen des gouttelettes en fonction du nombre capillaire

V.2.2 Étude hydrodynamique de l'écoulement diphasique au croisement du "300-600"

La figure V.3 est une représentation servant à schématiser l'écoulement à jets en impact au niveau du croisement. Les deux flux (eau et huile) s'entrechoquent au niveau du croisement où les pressions s'uniformisent sachant qu'en amont elles étaient différentes, la pression d'huile étant supérieure à celle de l'eau. Ajouté à la section de passage d'eau représentant seulement 25 % de celle de l'huile, l'axe de ce canal d'eau se trouve décalé de 1/4 de diamètre hydraulique (1/4 Dh = 150 μm) par rapport à l'axe du canal d'huile. Du fait d'une admission d'eau désaxée, comme représenté sur la figure V.3-(A) et (B), ce "swirl" est parfois observé pour la phase dispersée. C'est à l'issue de cette courbure de l'écoulement que nait l'enroulement de la phase dispersée. La courbure des lignes de courant fournit l'élongation et donc le fractionnement recherché.

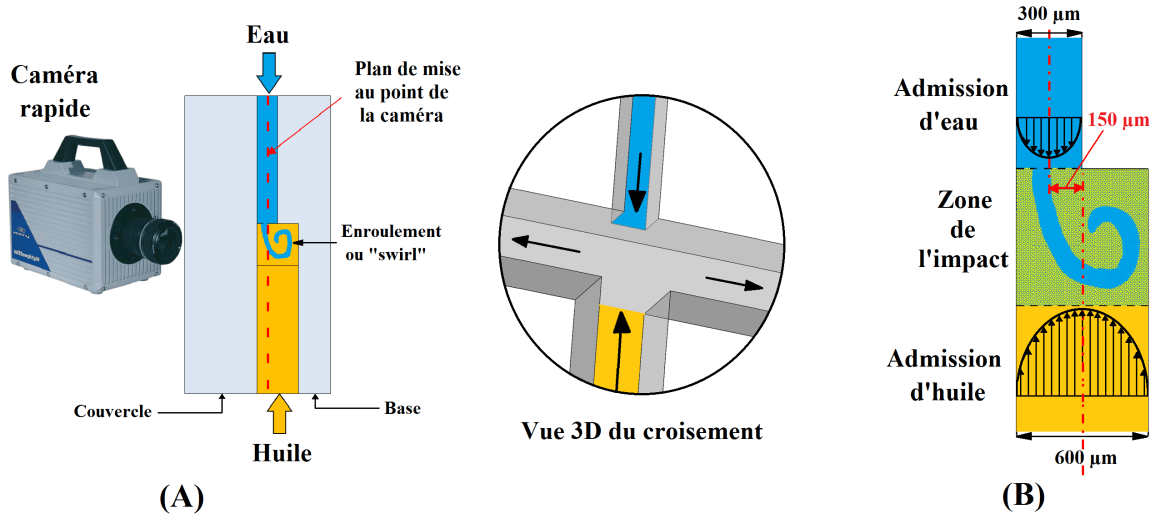


FIG. V.3: Zone d'impact du micro-canal "300-600".

Les données expérimentales pour les figures V.5, V.6 et V.7 sont disponibles sur les tableaux V.1 et V.2 (voir les cellules grisées). Dans les cas réunis ici, les paramètres variés sont la vitesse débitante de la phase dispersée (voir la figure V.5 et V.6), la tension inter-faciale (voir les figures V.4), et la combinaison tension inter-faciale et viscosité dynamique (voir la figure V.6). L'aspect de l'enroulement de la phase dispersée, de couleur sombre, apparait davantage influencé par l'énergie cinétique de la phase dispersée (voir la figure V.6) ou encore la viscosité de la phase continue (voir la figure V.7). En effet, ces deux exemples montrent une structure d'écoulement de la phase dispersée plus complexe avec une interface eau-huile très déformée, c'est-à-dire l'apparition de formes irrégulières à la surface de cet enroulement. Il faut comprendre que ce dernier est animé par une combinaison de deux mouvements : un mouvement de rotation comme explicité sur la figure V.3 superposé à un mouvement d'advection (transport) vers les deux sorties simultanément. Dans une telle configuration d'écoulement une augmentation du débit de la phase dispersée accélère la rotation (accentuant la force centrifuge) et l'advection vers les sorties.

Une analyse plus poussée des clichées nous permet de mieux comprendre le principe de fractionnement du présent procédé. Les captures d'images sont réalisées sous les conditions d'écoulement suivantes : la phase continue contient 0,3 % en masse de Span83, le débit d'eau est 9,06 mL/min, le débit d'huile 62,84 mL/min et la fraction volumique d'eau vaut 12,6 %. La fréquence d'acquisition est de 1 kHz et la durée d'exposition du capteur CMOS de la caméra est de 1 μs. D'après les données de l'écoulement mentionnées ci-dessus, les vitesses moyennes des phases à l'admission sont de 2,91 m/s pour l'huile et de 1,68 m/s pour l'eau. Pour une

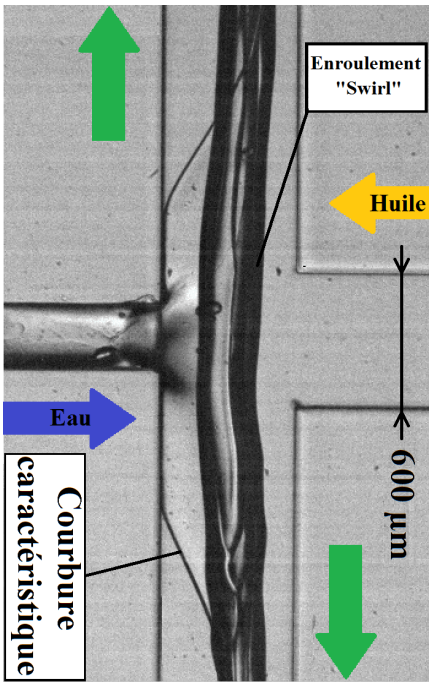


FIG. V.4: Q_e = 9,53 mL/min et Q_h = 68,31 mL/min avec 0,3 % en masse de Span83. La fréquence d'acquisition : 10 kHz.

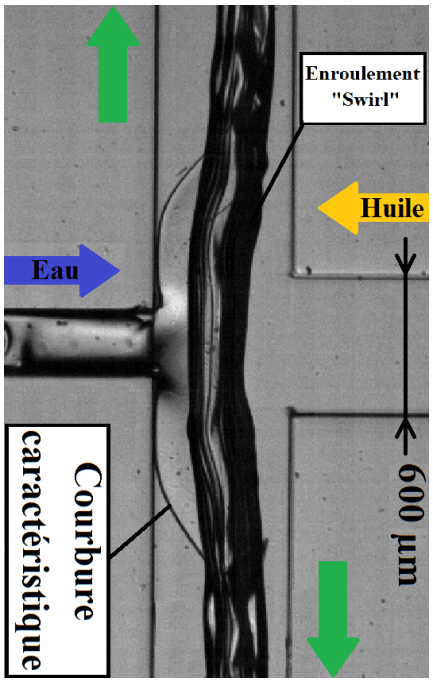


FIG. V.5: Q_e = 9,74 mL/min et Q_h = 73,99 mL/min avec 0 % en masse de Span83. La fréquence d'acquisition : 10 kHz.

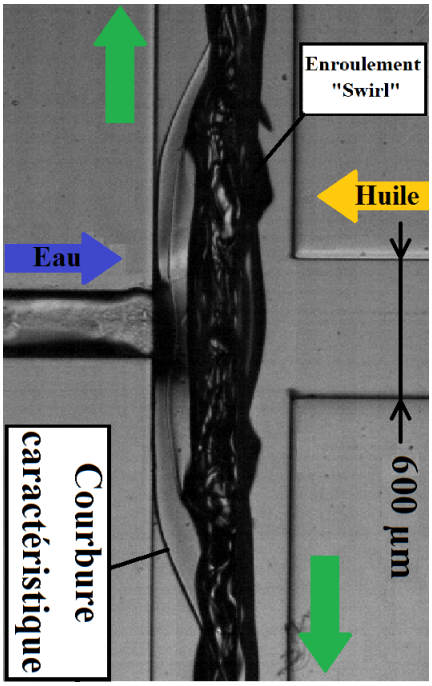


FIG. V.6: Q_e = 14,58 mL/min et Q_h = 71,53 mL/min avec 0 % en masse de Span83. La fréquence d'acquisition : 10 kHz.

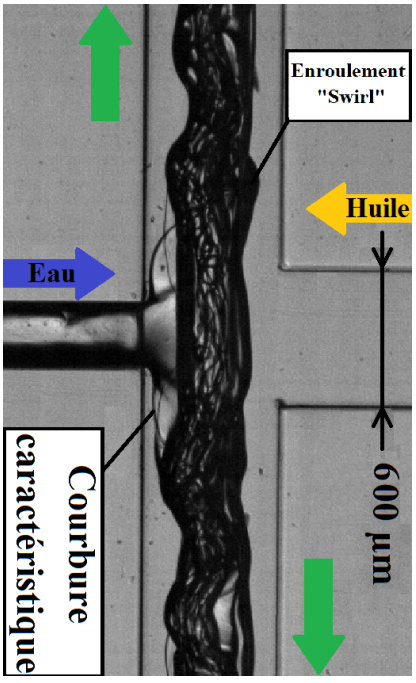


FIG. V.7: Q_e = 13,91 mL/min et Q_h = 78,16 mL/min, avec 5 % en masse de Butan-1-ol. La fréquence d'acquisition : 10 kHz.

répartition équitable des deux phases entre les deux canaux de sortie de l'émulsion, on obtient une vitesse moyenne de l'émulsion de 1,66 m/s.

La figure V.8 et V.9 réunissent huit images successives de cet écoulement. On constate que la phase dispersée se concentre au centre du canal à cause du fort cisaillement présent aux parois (la vitesse aux parois étant nulle). On a repéré deux singularités sur le tourbillon permettant de suivre son évolution en fonction du temps. Le premier repère est un appendice visible sur le côté droit du tourbillon qui est repéré par une flèche de couleur blanche. Sur les sept premières images, il a effectué un déplacement estimé à 2,75 Dh (Dh = 600 μm) pour une durée de temps de 5.10^{-3} s, sa vitesse est donc estimée à 0,33 m/s dans l'axe principal d'écoulement. Cette vitesse faible d'avancement de l'appendice, prouve l'existence d'un mouvement de rotation qui est visible sur la succession d'images de la figure V.8. Le second étant cette forme arrondie et bosselée sur la gauche du tourbillon repérée par une flèche de couleur rouge. Elle est repérée sur 4 images effectuant un déplacement de 1,75 Dh durant une durée de t = 2.10^{-3} s, sa vitesse est estimée à 0,53 m/s.

L'hétérogénéité du champ de vitesse confirme la complexité de cette structure enroulée, et confirme la présence d'importants taux de cisaillement et d'élongation combinés avec des effets de rotation.

⚠

Cela confirme également l'hypothèse de la composition de la structure enroulée (enroulement) par un enchevêtrement de filaments d'eau et gouttelettes d'eau entouré d'huile de tournesol (voir le paragraphe § VI.2). L'aspect noir et l'homogénéité optique du tourbillon n'est qu'un effet optique dû à la diffusion multiple. Afin de pousser davantage nos investigations, on s'est intéressé dans la partie qui suit à cet enroulement qui se forme au centre et se prolonge dans les canaux d'émulsions.

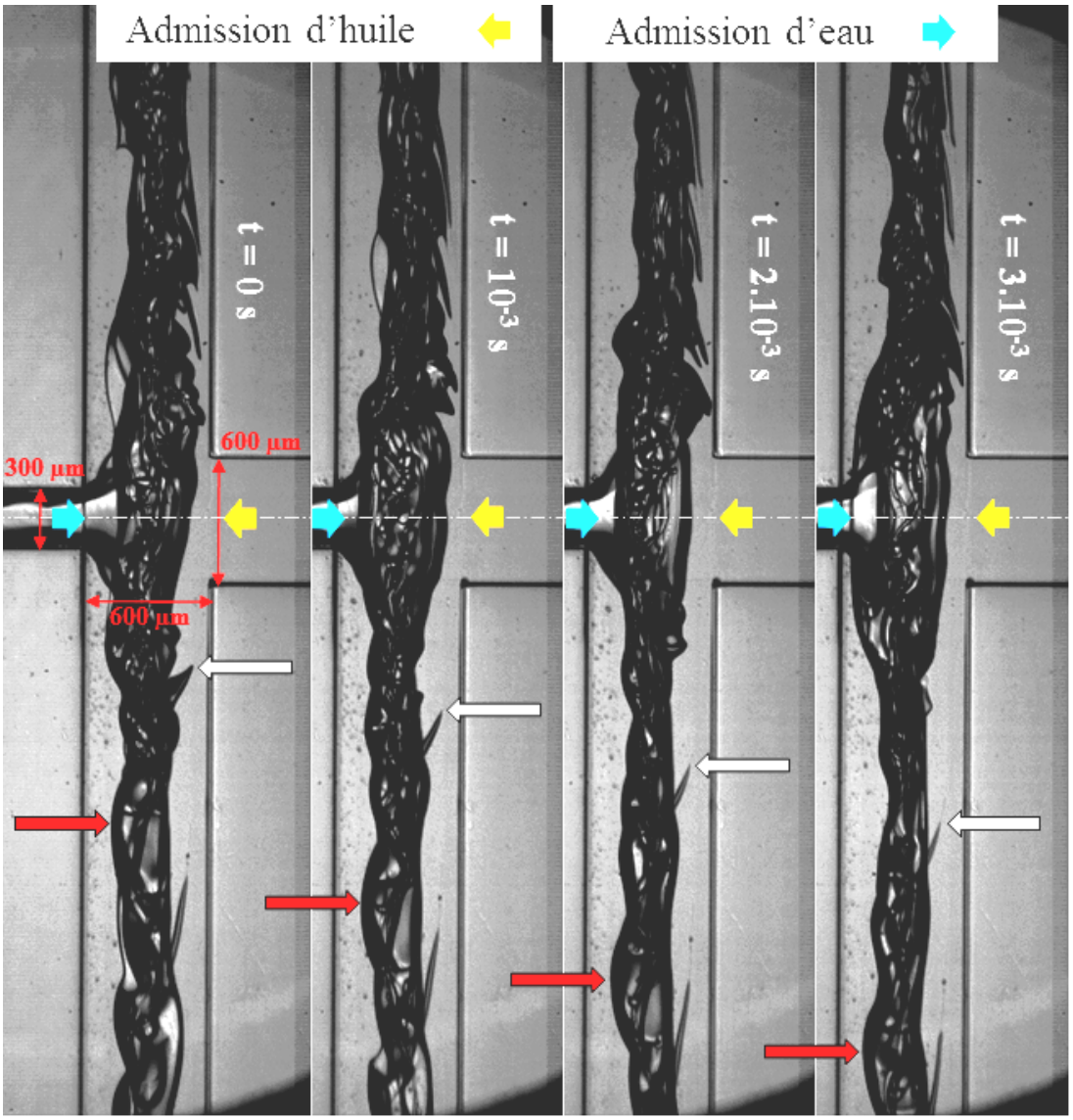


FIG. V.8: Visualisation d'un écoulement avec Q_e = 9,06 mL/min et Q_h = 62,84 mL/min avec 0,3 % en masse de Span83 (1/2). La fréquence d'acquisition : 1 kHz.

V.2.3 Étude hydrodynamique de l'écoulement diphasique au niveau des sorties du "300-600"

Après l'étude de cet écoulement au croisement, on s'intéresse maintenant à la forme de cette structure hydrodynamique ("enroulement" ou "swirl") à une certaine distance du croisement. La zone concernée par les visualisations est localisée en sortie du micro-canal 300 x 600, désignée par "Zone d'intérêt N°2" sur la figure V.10. Le but poursuivi étant de visualiser à haute fréquence l'évolution de cette structure tourbillonnaire, qui se forme au croisement, afin de connaître son évolution au niveau des canaux de sorties. Comme représenté sur la figure V.3, on garde la même configuration pour les différents écoulements des deux phases et de l'émul-

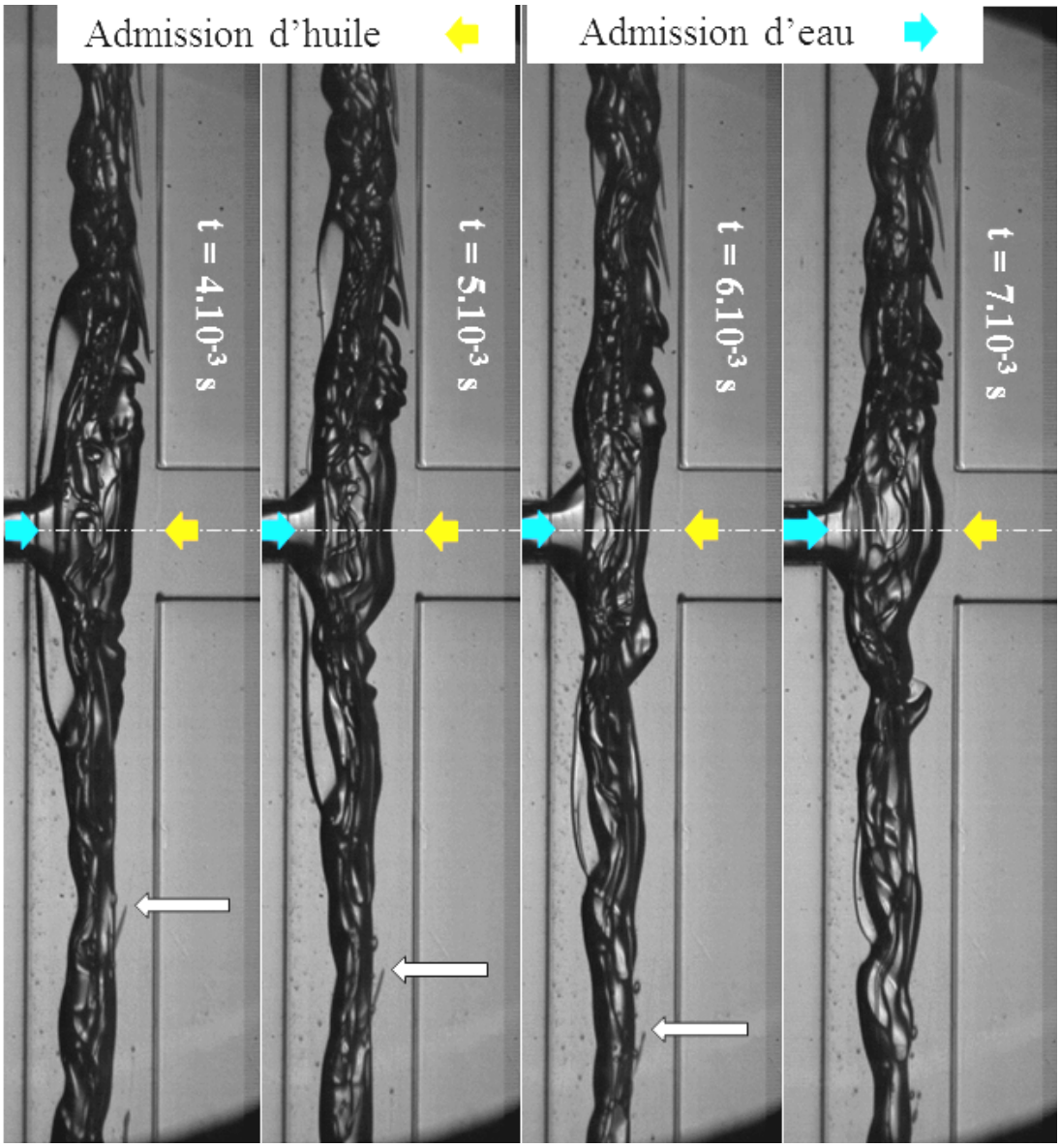


FIG. V.9: Visualisation d'un écoulement avec Q_e = 9,06 mL/min et Q_h = 62,84 mL/min avec 0,3 % en masse de Span83 (2/2). La fréquence d'acquisition : 1 kHz.

sion.

Les images issues des visualisations avec la caméra rapide (f = 1 kHz pour une durée d'exposition du capteur CMOS de 1 μs) sont réunies sur les figures V.11, V.12, V.13 et V.14. Le sens d'écoulement des deux phases est indiqué par une flèche de couleur noire. On rappelle que le canal de sortie possède une section carrée de 600 μm de côté. Le filament de couleur noir visible sur ces figures représente l'écoulement de la phase dispersée (eau) qui est en fait le prolongement du tourbillon formé en amont. Autour de ce dernier s'écoule la phase continue (huile de tournesol) formant une configuration d'écoulement co-courant (voir le paragraphe § II.4.2(a)).

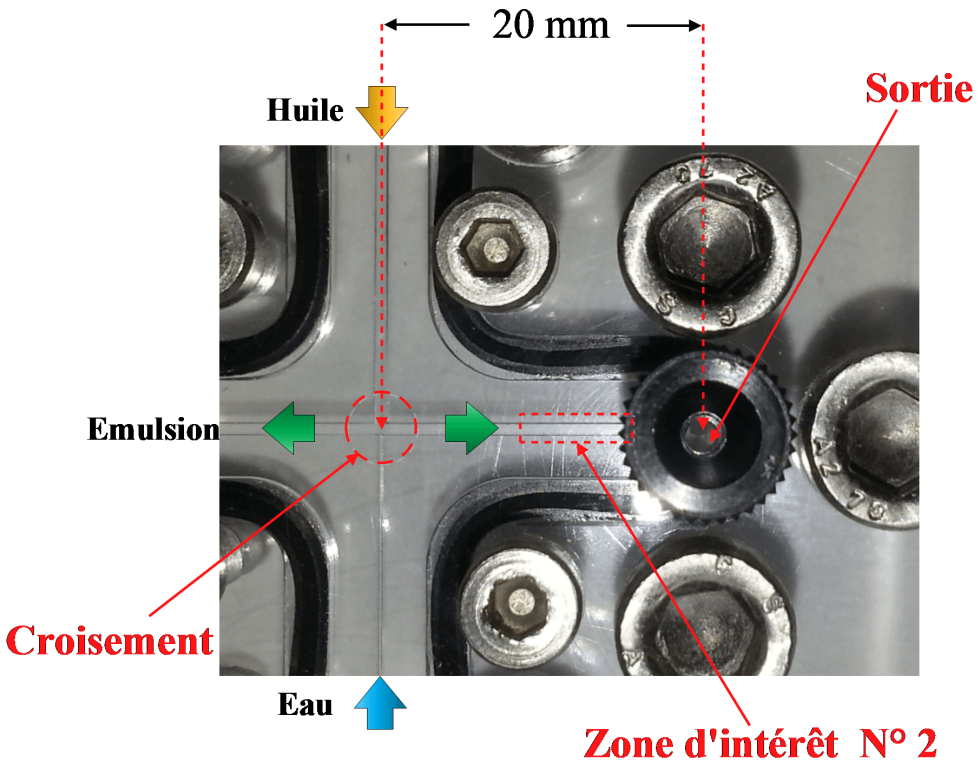


FIG. V.10: Schéma des visualisations de la sortie du micro-canal "300-600".

Pour les expériences réalisées ici, on a pris le soin d'employer une phase continue sans Span83 et sans Butanol, c'est-à-dire le cas le plus défavorable à une dispersion eau dans huile (faible nombre Capillaire). Pour le débit d'eau le plus faible on remarque un seul filament bien plaqué à la paroi située du côté d'admission d'huile (voir la figure V.11). Ce filament possède un diamètre de 1/5 de Dh, c'est-à-dire 120 μm. A mesure que le débit d'eau (phase dispersée) augmente, on constate un développement du filament en épaisseur vers le centre du canal (voir la figure V.14).

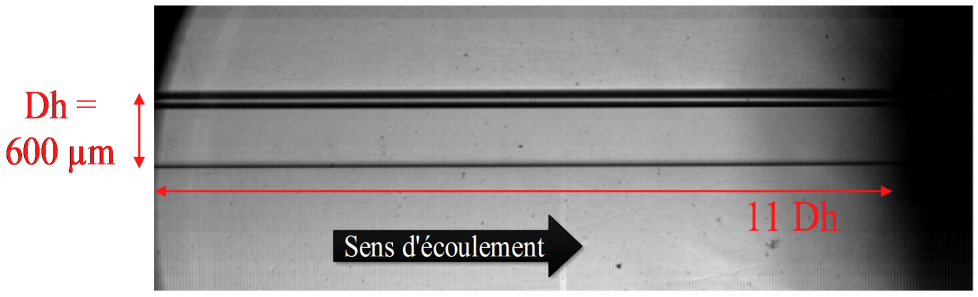


FIG. V.11: Q_e = 5,09 mL/min et Q_h = 68,47 mL/min avec 0 % en masse de Span83.

L'effet hydrodynamique de l'augmentation du débit apparait clairement en analysant ces clichés. A faible débit de l'eau (5,09 mL/min) le filament hérite d'un aspect lisse, rectiligne et

imperturbé (voir la figure V.11). Une augmentation aussi petite fût-t-elle du débit d'eau fait apparaitre des structures d'écoulements complexes. Avec un débit de 7,10 mL/min, on remarque la formation de perturbations sur le filet de la phase dispersée. On distingue ce mouvement de rotation du filet combiné au mouvement de convection du filament conduisant à l'apparition d'un effet de torsion suivi d'un fractionnement du filament. A cause d'un débit d'eau plus important (10,04 mL/min), les torsions du filament se rapprochent à tel point qu'elles se confondent (voir la figure V.13). Une augmentation plus importante du débit, celui-ci atteignant 15,17 mL/min, provoque la dislocation du filament (voir la figure V.14).

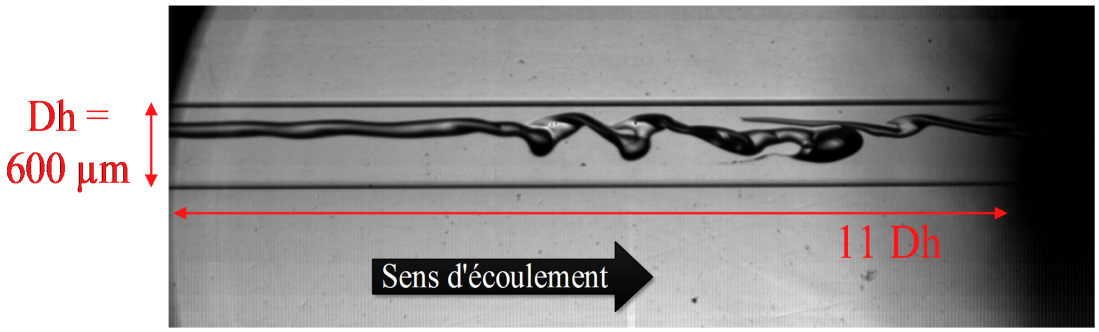


FIG. V.12: Q_e = 7,10 mL/min et Q_h = 64,86 mL/min 0 % en masse de Span83.

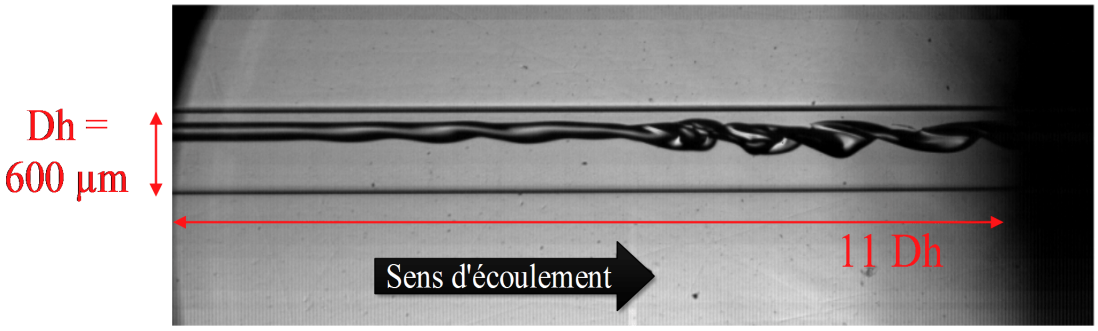


FIG. V.13: Q_e = 10,04 mL/min et Q_h = 59,53 mL/min 0 % en masse de Span83.

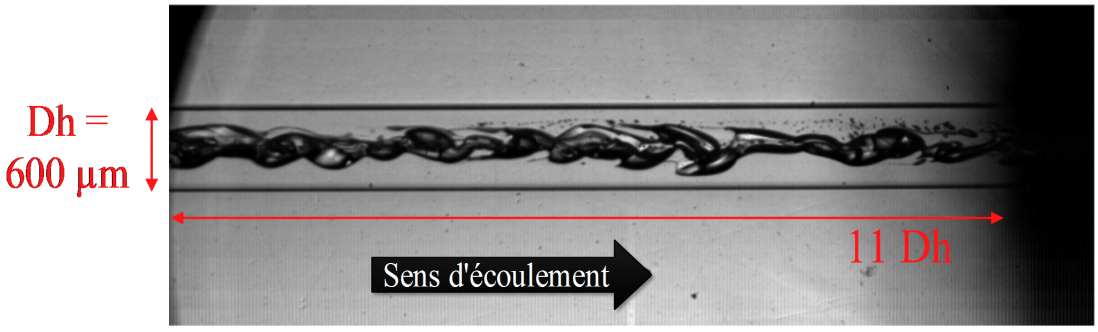


FIG. V.14: Q_e = 15,17 mL/min et Q_h = 67,33 mL/min 0 % en masse de Span83.

On distingue clairement la formation de très petites gouttelettes en périphérie d'autres gouttelettes nettement plus importantes preuve de l'existence d'une émulsion polydispersée. Ce filament disloqué forme une trainée de gouttelettes qui s'écoulent en sa périphérie, mais à distance des parois, en direction de la sortie (voir les figures V.15 et V.16). Sur ces figures on distingue que ces déformations du filament se manifestent sous forme de plis, résultat d'une combinaison d'un mouvement de convection vers la sortie et la rotation de celui-ci.

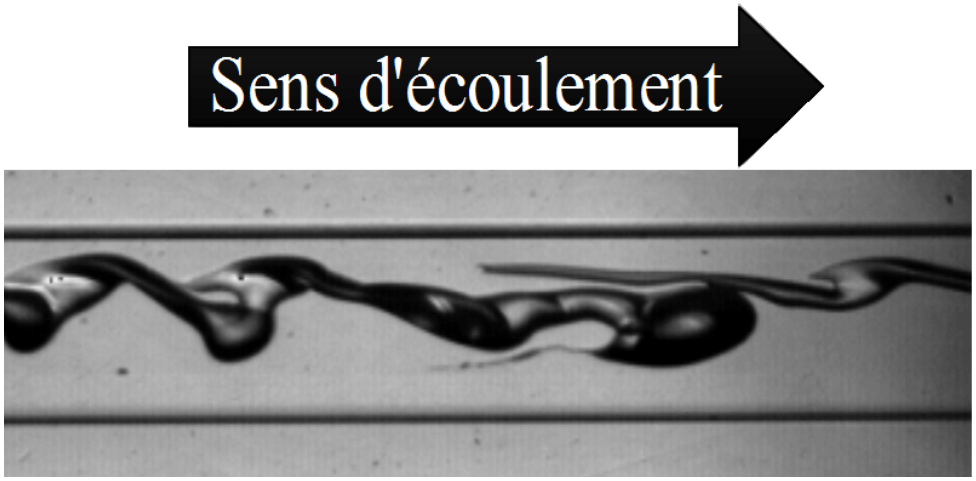


FIG. V.15: Q_e = 10,04 mL/min et Q_h = 59,53 mL/min 0 % en masse de Span83.

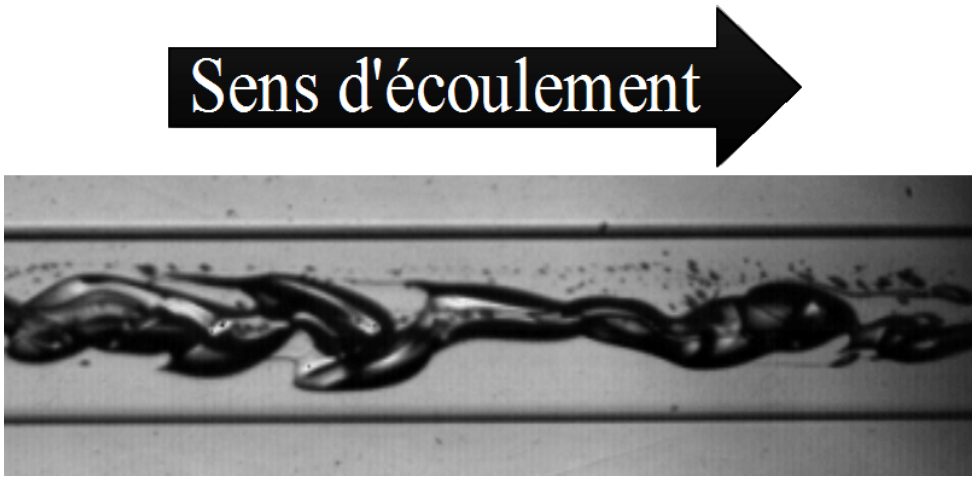


FIG. V.16: Q_e = 15,17 mL/min et Q_h = 67,33 mL/min 0 % en masse de Span83.

La figures V.17 montre un exemple d'aspect d'émulsion de type eau dans huile résultat du micro-canal "300-600" en mode de fonctionnement continu. On obtient une émulsion homogène de couleur jaune laiteux. Cette couleur jaune est celle de l'huile de tournesol employée et l'aspect laiteux prouve la présence de gouttelette d'eau dispersées.

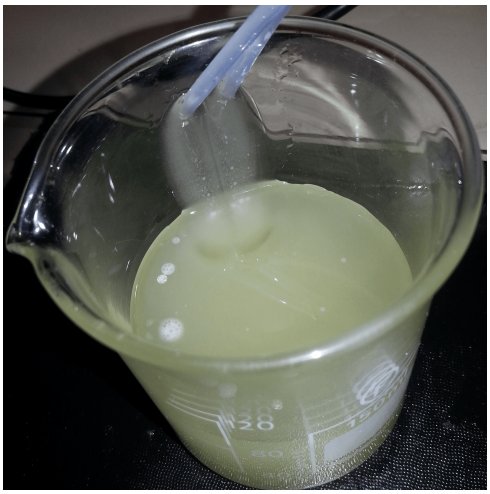


FIG. V.17: Émulsion obtenue par le présent procédé d'émulsification.

V.3 Prise en compte des propriétés physiques par analyse dimensionnelle

L'analyse dimensionnelle est un outil employé afin de donner une équation globale régissant un phénomène physique, dans le cas présent un procédé de dispersion liquide/liquide. La méthodologie consiste à identifier les variables dimensionnelles intervenant dans ce phénomène physique (variables intrinsèques), puis de former des groupes sans dimension à partir de ces variables. Ces groupes adimensionnels dont le nombre est inférieur aux variables dimensionnelles et formés des produits de ces mêmes variables dimensionnelles servent à décrire le phénomène physique [Ciblac, 2010].

[Kiss *et al.*, 2011] se sont penchés sur l'analyse dimensionnelle du processus de fractionnement liquide-liquide (huile dans eau) au travers de mélangeurs statiques. Après un travail d'identification de variables et de formation de groupes dimensionnels pertinents, ils ont proposé l'équation suivante pour rendre compte du fractionnement dans les mélangeurs statiques de type SMX :

$$\frac{d_{32}}{D} = \left(\frac{\frac{\mu_d \, D}{\gamma_{e/h}}}{\sqrt{\rho \, D / \gamma_{e/h}}} \right)^{1/3} \left(\frac{\frac{D}{v}}{\frac{\mu_d \, D}{\gamma_{e/h}}} \right)^{1/2} \tag{V.2}$$

Avec :

- d_{32} : diamètre de Sauter des gouttes dispersées [m],
- D : diamètre du mélangeur statique SMX [m],

– μ_d : viscosité dynamique de la phase dispersée [Pa.s],

– $\gamma_{e/h}$: tension inter-faciale entre eau et huile [N/m],

– ρ : masses volumique [kg/m^3],

– v : vitesse d'écoulement [m/s].

L'équation de comportement du procédé (V.2) est formée à partir de ratios d'échelles de temps à savoir : le temps de relaxation de la gouttelette $\mu_d\ d/\gamma_{e/h}$ et l'échelle de temps de capillarité $\sqrt{\rho\ D/\gamma_{e/h}}$ (d'après [Mckinley, 2005], appelé aussi Rayleigh time-scale (Rayleigh, 1879)).

En ce qui concerne le fractionnement liquide-liquide dans les micro-systèmes qui font l'objet de cette étude, **huit variables dimensionnelles** sont identifiées, à savoir :

1. Masse volumique de l'huile : ρ_h,
2. Masse volumique de l'eau : ρ_e,
3. Viscosité dynamique de l'huile : μ_h,
4. Viscosité dynamique de l'eau : μ_e,
5. Débit d'huile (vitesse) : Q_h,
6. Débit d'eau (vitesse) : Q_e,
7. Tension inter-faciale : $\gamma_{e/h}$,
8. Diamètre des gouttes : $d_{1/d}$.

D'après le théorème de Vaschy-Buckingham, le nombre de groupes sans dimension à former est alors égal, au nombre de variables indépendantes (**8 variables**) auquel est soustrait le nombre de dimensions fondamentales (**3 dimensions fondamentales** : Longueur : [L], Masse : [M], Temps : [T]). On est en mesure de former alors cinq groupes adimensionnels qui sont présentés ci-dessous :

1. Le nombre d'Ohnesorge : Oh = $\frac{\mu_h}{\sqrt{d_{1/d}\ \rho_e\ \gamma_{e/h}}}$. Il caractérise simultanément la déformation et l'advection imposées par la phase continue sur les gouttes de phase dispersée (voir le paragraphe § II.4.1-(c)).
2. Le nombre capillaire : Ca = $\frac{v_h\ \mu_h}{\gamma_{e/h}}$. Il exprime la force appliquée par l'écoulement afin de fractionner une gouttelette en opposition avec sa force de cohésion (voir le paragraphe § II.4.1-(b)).
3. Le rapport de viscosités : $p^{-1} = \frac{\mu_h}{\mu_e}$. Il représente l'inverse du rapport de viscosités $p = \frac{\mu_e}{\mu_h}$. Ce dernier d'après [Grace, 1982] est un paramètre crucial pour le fractionnement liquide-liquide induit par le cisaillement.
4. La fraction volumique d'eau : $\frac{Q_e}{Q_e+Q_h}$
5. Le rapport des masses volumiques : $\frac{\rho_h}{\rho_e}$

L'équation suivante est alors proposée pour expliciter le nombre d'Ohnesorge, pour laquelle il faut déterminer les constantes a, b, c, d, et e.

$$Oh_{Theorie} = \frac{\mu_h}{\sqrt{d_{1/d}\,\rho_e\,\gamma_{e/h}}} = a\left(\frac{v_h\,\mu_h}{\gamma_{e/h}}\right)^b\left(\frac{\mu_h}{\mu_e}\right)^c\left(\frac{Q_e}{Q_e+Q_h}\right)^d\left(\frac{\rho_h}{\rho_e}\right)^e \tag{V.3}$$

Les coefficients de cette équation (V.3) sont déterminés au moyen d'un programme d'optimisation sous MatLab. L'optimisation est une méthode visant à limiter les écarts entre les données expérimentales du nombre d'Ohnesorge et ses valeurs calculées au moyen de l'équation (V.3). Ce travail d'optimisation permet de déterminer les coefficients a,b,c,d et e pour lesquels les points se rapprochent autour de la ligne de référence Oh_{Exp} = $Oh_{theorie}$, représentée en pointillés sur la figure V.18.

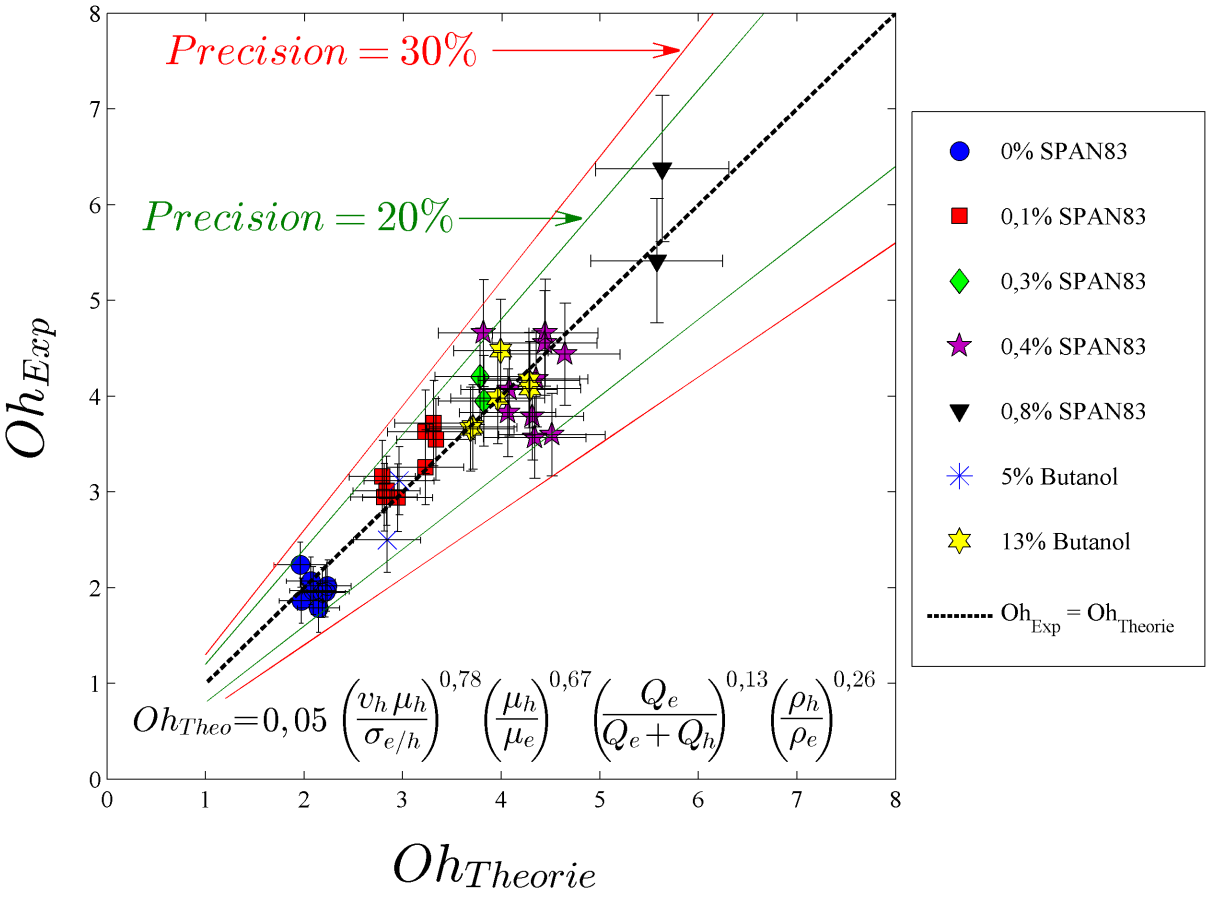


FIG. V.18: Analyse dimensionnelle appliquée sur le micro-canal 300×600.

Après une exécution du programme d'optimisation, les valeurs des coefficients obtenus sont les suivants : **a = 0,05, b = 0,78, c = 0,67, d = 0,13 et e = 0,26**. Le modèle d'analyse dimensionnel pour le procédé d'émulsification à travers le micro-canal "300-600" se présente sous la

forme suivante :

$$Oh_{Theorie} = \frac{\mu_h}{\sqrt{d_{\overline{1/d}}\ \rho_e\ \gamma_{e/h}}} = 0,05 \left(\frac{v_h\ \mu_h}{\gamma_{e/h}}\right)^{0,78} \left(\frac{\mu_h}{\mu_e}\right)^{0,67} \left(\frac{Q_e}{Q_e + Q_h}\right)^{0,13} \left(\frac{\rho_h}{\rho_e}\right)^{0,26} \quad \text{(V.4)}$$

Le coefficient de corrélation linéaire "R^2" est employé afin de confirmer l'intensité de la liaison existant entre les variables en estimant l'écart entre les points expérimentaux et la droite théorique. Ce dernier exprime le rapport de la covariance σ_{xy} sur le produit des écarts types $\sigma_x.\sigma_y$. Dans le cas présent, **R^2 = 94,03 %** (voir figure V.18). **L'erreur relative absolue moyenne "$e_m = \frac{1}{n}\ \sum_{i=1}^{n} |\frac{Oh_{exp} - Oh_{theo}}{Oh_{exp}}|$" est également estimée, elle vaut 7,94 %**.

Les coefficients des deux derniers groupes dimensionnels, à savoir : $\left(\frac{Q_e}{Q_e+Q_h}\right)^{0,13}$ et $\left(\frac{\rho_h}{\rho_e}\right)^{0,26}$, sont faibles ; nous nous sommes intéressés à l'importance de leur influence. Dans un premier temps, seulement le groupe $\left(\frac{Q_e}{Q_e+Q_h}\right)^{0,13}$ a été écarté. Cela s'est traduit graphiquement par un déplacement des points sous la courbe " $Oh_{Exp} = Oh_{Theorie}$" représentée sur la figure V.18 ; par ailleurs, **l'erreur moyenne relative absolue a atteint 36 %**. Le coefficient de corrélation linéaire (R^2) vaut 92,36 %.

Dans un second temps, seulement le groupe $\left(\frac{\rho_h}{\rho_e}\right)^{0,26}$ est écarté. Cette modification n'a eu aucune incidence sur le coefficient de corrélation (R^2 = 94,03 %) ou bien sur la répartition des points par rapport à la courbe $Oh_{Exp} = Oh_{Thorie}$. **L'erreur moyenne relative absolue a augmenté d'un point atteignant 9,05 %.** Nous concluons que le rapport de la masse volumique de la phase continue (ρ_h) sur celui de la phase dispersée (ρ_e) possède une influence relativement négligeable sur le procédés d'émulsification. L'équation résultant de l'analyse dimensionnelle équation (V.3) peut alors adopter la forme ci-dessous :

$$Oh_{Theorie} = \frac{\mu_h}{\sqrt{d_{\overline{1/d}}\ \rho_e\ \gamma_{e/h}}} = 0,05 \left(\frac{v_h\ \mu_h}{\gamma_{e/h}}\right)^{0,78} \left(\frac{\mu_h}{\mu_e}\right)^{0,67} \left(\frac{Q_e}{Q_e + Q_h}\right)^{0,13} \quad \text{(V.5)}$$

Il est rappelé que le nombre d'Ohnesorge indique le rapport des contraintes de cisaillement générés par les forces visqueuses ($\frac{\mu_h\ v_h}{d_{10}}$) dans l'écoulement et déformant les gouttes sur les forces d'inertie ($\rho_e\ v_h^2$) et les forces inter-faciales ($4\ \pi\ d_{10}\ \gamma_{e/h}$). A l'issue de cette analyse dimensionnelle, réalisée pour ce processus d'émulsification dans le micro-canal "300-600", une dépendance a été établie pour le nombre d'Ohnesorge vis à vis des trois groupes adimensionnels suivants :

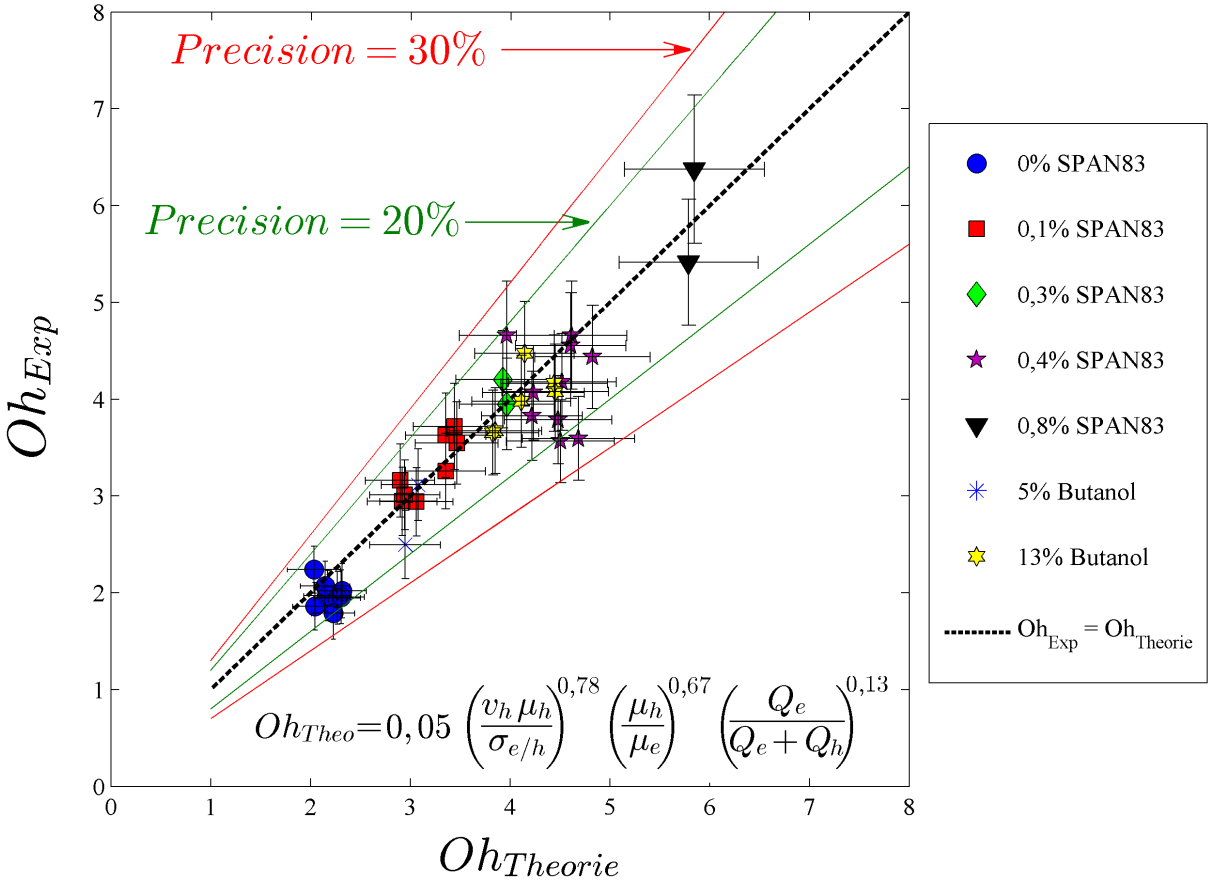


FIG. V.19: Analyse dimensionnelle appliquée sur le micro-canal "300-600".

- Le nombre capillaire : $Ca = \frac{v_h\,\mu_h}{\gamma_{e/h}}$
- Le rapport de viscosités : $p^{-1} = \frac{\mu_h}{\mu_e}$
- La fraction volumique d'eau : $\varphi = \frac{Q_e}{Q_e+Q_h}$

Les exposants des groupes adimensionnels affichés dans l'équation V.5 représentent l'influence qu'exerce chacun de ces groupes sur le présent processus de dispersion. En tête de ces influences, on constate le rapport des forces visqueuses sur les forces inter-faciales (le nombre capillaire avec un exposant : b=0,78). Ensuite, en seconde position l'influence du rapport de viscosités (exposant : c=0,67) et enfin la fraction volumique de la phase dispersée (φ_e).

V.4 Conservation de l'énergie mécanique en aval de la zone d'impact

Nous proposons dans cette partie un modèle simplifié permettant de prédire la taille moyenne des gouttelettes d'eau en sortie du micro-canal, basé cette fois-ci sur des considérations uniquement physiques. Pour ce faire une similitude au théorème de Bernoulli est appliquée. Comme

représenté sur la figure V.20, la charge "H" à l'entrée de chaque branche du micro-canal en croix est exprimée. En raison de la courte zone d'émulsification et d'une rugosité mesurée du fond du canal faible (r < 0,7 μm), on émet l'hypothèse de pertes de charge visqueuse négligeables. La hauteur de fluide, issue de la densité volumique d'énergie potentielle de gravité $\rho\ g\ h$, est négligée bien entendu en raison d'une hauteur de fluide dans les canaux qui sont considérées très faibles (600 μm et 300 μm). Les expressions des charges dans chaque canal sont réunies ci-après :

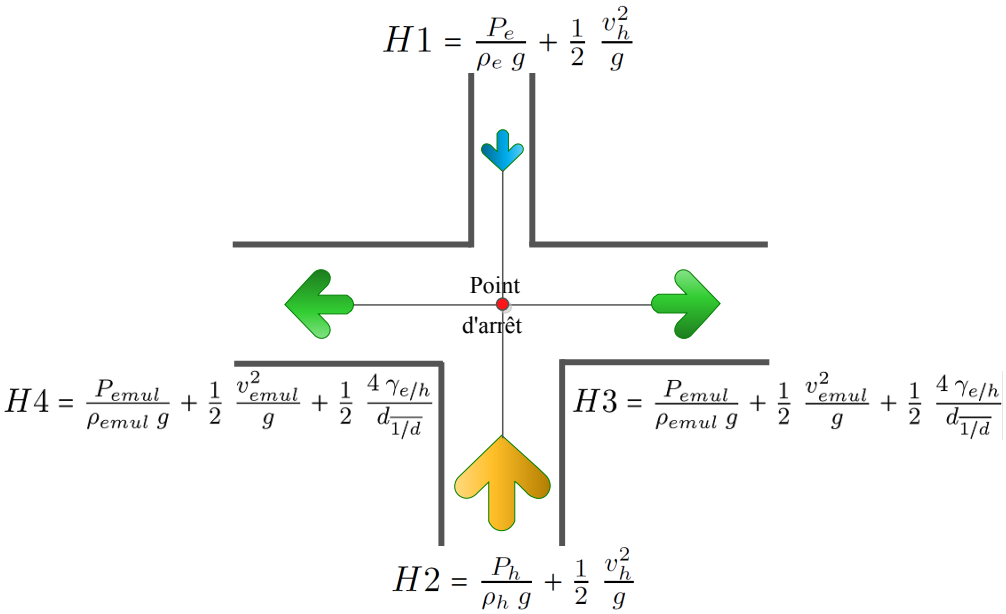


FIG. V.20: Application de la conservation d'énergie sur le canal en croix dans le cas de l'émulsification à jets en impact.

$$\begin{cases} H1 = \frac{P_e}{\rho_e\ g} + \frac{1}{2}\ \frac{v_e^2}{g} \\ H2 = \frac{P_h}{\rho_h\ g} + \frac{1}{2}\ \frac{v_h^2}{g} \\ H3 = \frac{P_{emul}}{\rho_{emul}\ g} + \frac{1}{2}\ \frac{v_{emul}^2}{g} + \frac{1}{2}\ \frac{4\ \gamma_{e/h}}{d_{\overline{1/d}}\ \rho_{emul}\ g} \\ H4 = \frac{P_{emul}}{\rho_{emul}\ g} + \frac{1}{2}\ \frac{v_{emul}^2}{g} + \frac{1}{2}\ \frac{4\ \gamma_{e/h}}{d_{\overline{1/d}}\ \rho_{emul}\ g} \end{cases} \tag{V.6}$$

Une dernière hypothèse simplificatrice est introduite, en considérant que les énergies cinétiques désignées par le terme $\frac{1}{2}\ \frac{v^2}{g}$ prédominent sur l'énergie potentielle de pression $\frac{P}{\rho\ g}$. Ajoutée à cela, la présence du point d'arrêt repéré au croisement des canaux permet de considérer l'unicité de la charge. Comme énoncé plus haut les pertes de charge sont négligées et cela permet d'écrire l'égalité des charges : H = H1 = H2 = H3 = H4 (voir la figure V.20). Ainsi, le modèle de la conservation de l'énergie mécanique est exécuté en égalant la somme des charges

sur la ligne de courant verticale (représenté par l'axe des admissions des deux phases sur la figure V.20) avec la somme des charges de la ligne de courant horizontale (représenté par l'axe de sortie de l'émulsion résultante) augmentée du terme lié à la création de l'interface eau-huile (voir la figure V.20). Ce qui permet d'écrire l'équation V.6 sous la forme suivante :

$$\frac{1}{2}\,\frac{v_h^2}{g} + \frac{1}{2}\,\frac{v_e^2}{g} = \frac{4\,\gamma_{e/h}}{d_{\overline{1/d}}\,\rho_{emul}\,g} + 2\,(\frac{1}{2}\,\frac{v_{emul}^2}{g}) \tag{V.7}$$

Les termes de l'équation V.7 sont ré-organisés de telle façon à obtenir des nombres adimensionnels exploitables et cela donne naissance à la forme intermédiaire suivante :

$$\sqrt{v_e^2 + \frac{\rho_h}{\rho_e}\,v_h^2 - 2\,\frac{\rho_{emul}}{\rho_e}\,v_{emul}^2} = \frac{\sqrt{8}\,\gamma_{e/h}}{\sqrt{d_{\overline{1/d}}\,\rho_e\,\gamma_{e/h}}} \tag{V.8}$$

En considérant $V_{eq} = \sqrt{v_e^2 + \frac{\rho_h}{\rho_e}\,v_h^2 - 2\,\frac{\rho_{emul}}{\rho_e}\,v_{emul}^2}$ comme vitesse équivalente, l'équation V.8 est simplifiée sous la forme suivante :

$$\frac{\mu_h\,V_{eq}}{\gamma_{e/h}} = \sqrt{8}\,\frac{\mu_h}{\sqrt{d_{\overline{1/d}}\,\rho_e\,\gamma_{e/h}}} \tag{V.9}$$

On fait apparaître un nombre capillaire équivalent Ca^* et le nombre d'Ohnesorge Oh. L'emploi de l'inverse du diamètre moyen $d_{1/d}$ est justifié par la pression de Laplace moyenne dans l'équation V.6.

$$Ca^* = \sqrt{8}\,Oh \tag{V.10}$$

L'équation V.10 met en évidence une relation linéaire entre le nombre capillaire spécifique Ca^* et le nombre Ohnesorge dont la pente est représentée par $\sqrt{8}$. Les résultats issus de cette conservation de l'énergie mécanique, considérée comme théorique, sont comparés aux données expérimentales sur la figure V.21. On constate que cette équation est en accord avec les mesures pour des valeurs de Ca^* comprises entre 5 et 20. Cependant, on assiste à une exception concernant les tests d'émulsification avec 13% en masse de Butanol dans la phase continue ce qui correspond à une baisse de 42% de la viscosité dynamique et à 53% de la tension interfaciale. **Le nombre, d'Ohnesorge prévu par l'équation n'est pas atteint quand on utilise cette solution. Ceci pourrait être interprété comme l'obtention d'un niveau de fractionnement moins élevé qu'avec les autres solutions**. Manifestement, ce modèle ne prend pas aussi bien en compte les paramètres physicochimiques que l'analyse dimensionnelle. Cette dernière ne

faisait pas apparaitre de comportement particulier pour la solution contenant 13 % en masse de Butan-1-ol.

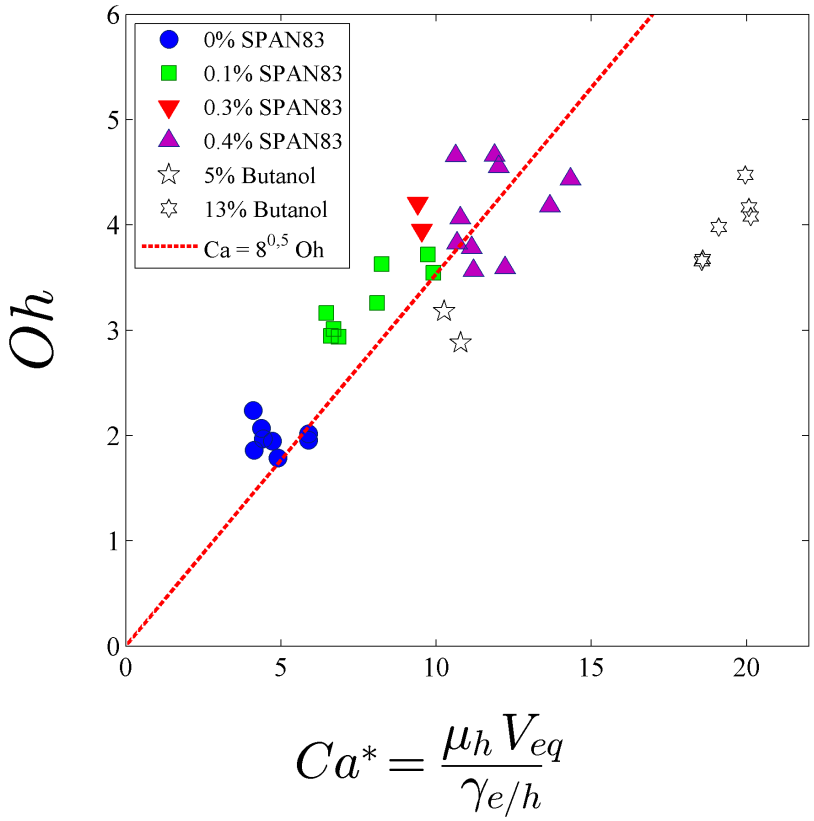


FIG. V.21: La conservation de l'énergie mécanique théorique $Ca^* = \sqrt{8}Oh$ est comparée aux données expérimentales issues des tests d'émulsification à travers le "300-600".

Il est probable que les faibles valeurs de la viscosité et de la tension inter-faciale favorisent l'apparition d'un écoulement plus désordonné, représenté sur la figure V.34. L'écoulement devient différent de l'écoulement type des jets en impact. L'estimation de l'erreur relative moyenne $\left(e = \frac{1}{n_i}\sum_i \left|\frac{Valeur_{exp.}(i) - Valeur_{theo.}(i)}{Valeur_{exp.}(i)}\right|\right)$ offre 15% pour tous les cas dont la viscosité dynamique est supérieure à 40 $mPa.s$, c'est-à-dire les tests avec ou sans Span83 et le test avec 5% de Butanol.

Les comparaisons avec les calculs théoriques effectués sur les figures V.21 et V.18 permettent non seulement de fournir une prédiction du diamètre obtenu, mais aussi de vérifier que le diamètre des gouttelettes obtenu ne résulte pas d'erreurs expérimentales telles que les vibrations ou la rugosité du canal.

La comparaison du modèle issu de l'analyse dimensionnelle V.5 et du modèle de la conservation d'énergie est effectuée. Cette comparaison est établie sur la base des valeurs expéri-

mentales des nombres capillaires affichées en abscisses de la figure V.22. Un calcul de l'erreur moyenne absolue sur les nombres d'Ohnesorge issus de l'analyse dimensionnelle et du bilan de conservation d'énergie offre 22 %, avec une erreur absolue maximale de 40 % (voir la figure V.22).

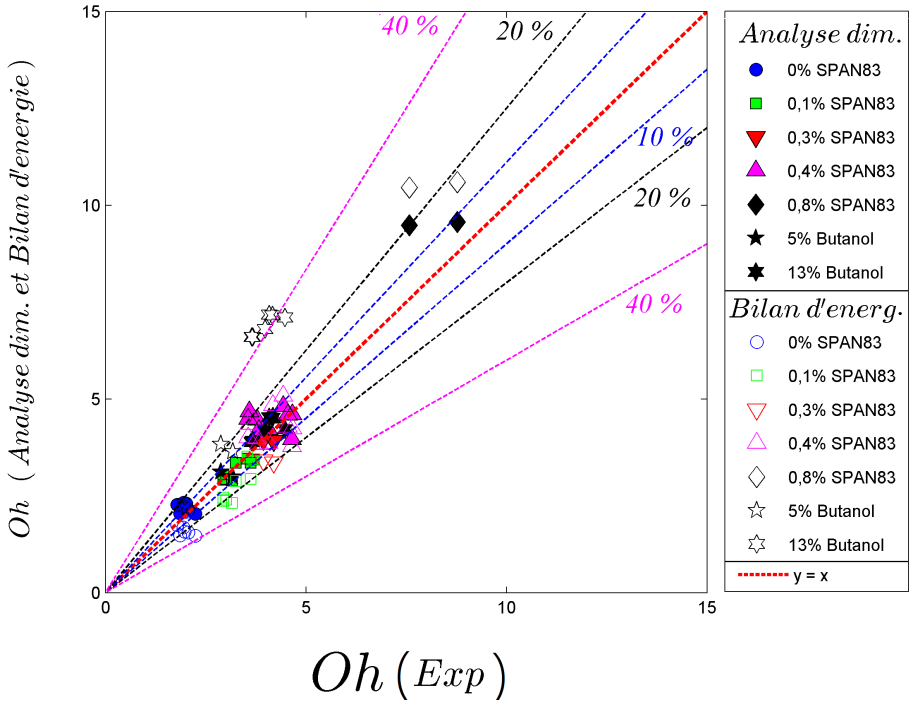


FIG. V.22: Comparaison des deux modèles de prédiction du diamètre des gouttelettes.

V.5 Mesure de la lumière laser collectée à travers le micro-canal "300-600"

Cette mesure a été adoptée afin de pallier certaines limites liées à l'emploi de la technique de visualisation à haute fréquence, à savoir :

- La résolution limitée du capteur CCD de la caméra rapide.
- La caméra rapide n'intègre que durant le temps de l'ouverture du diaphragme (acquisition),
- la caméra intègre uniquement sur le plan de mise au point mais aucunement en profondeur (voir la figure V.3),
- Comme énoncé au paragraphe § II.6, la lumière polarisée rend compte des différentes formes qu'adoptent la phase dispersée c'est-à-dire de l'étirement.

V.5.1 Méthode de post-traitement des données brutes

Les essais sur la lumière laser collectée ont permis d'effectuer un ensemble des mesures ponctuelles. Ces mesures ont été réalisées en pointant des zones espacées de 150 μm au niveau du croisement des canaux. La figure V.23 montre le maillage de la zone d'investigation.

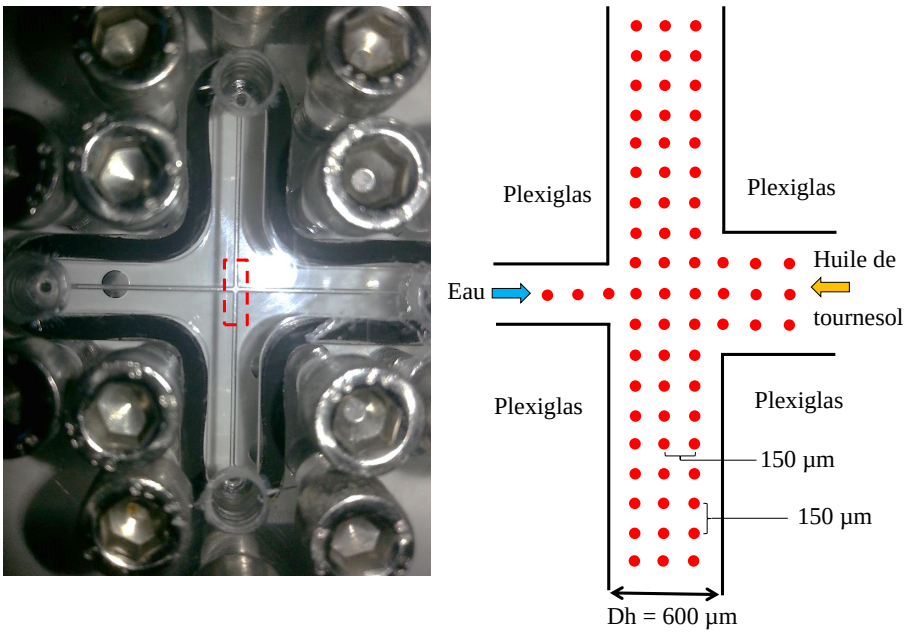


FIG. V.23: Schéma de mesure de la lumière collectée. Les points rouges représentent les points de pointage du faisceau laser focalisé.

Pendant les essais de lumière laser collectée, le faisceau laser focalisé traverse le canal, il balaye ainsi un volume cylindrique (voir la figure V.24). Ce dernier est caractérisé par une longueur correspondant à la hauteur du canal (600 μm) et un diamètre égal à celui du laser polarisé et focalisé (de l'ordre de 100 à 150 μm). Le volume balayé par le laser comprend des fractions volumiques d'eau.

Les figures V.25, V.27, V.28 présentent trois exemples de signaux bruts capturés à l'aide de la photo-diode et transformés en signaux de tension. La tension a été enregistrée au moyen d'un oscilloscope. La fréquence d'acquisition de ce dernier étant fixée à 500 Hz et sa fenêtre d'enregistrement contient systématiquement 2500 points, on a pu couvrir ainsi une durée d'enregistrement de 5 secondes. Cependant, on remarque que les signaux possèdent une longueur d'enregistrement équivalent à 4,5 secondes seulement. Cela s'explique par la présence d'une zone de rafraichissement du signal estimée à 0,5 seconde.

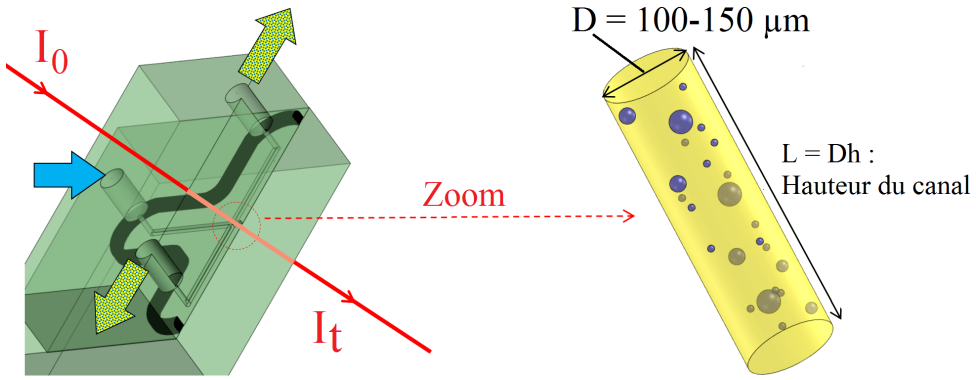


FIG. V.24: Coupe longitudinale du micro-canal traversé par le faisceau laser (à gauche). Volume illuminé par le laser en traversant la zone d'émulsification (à droite).

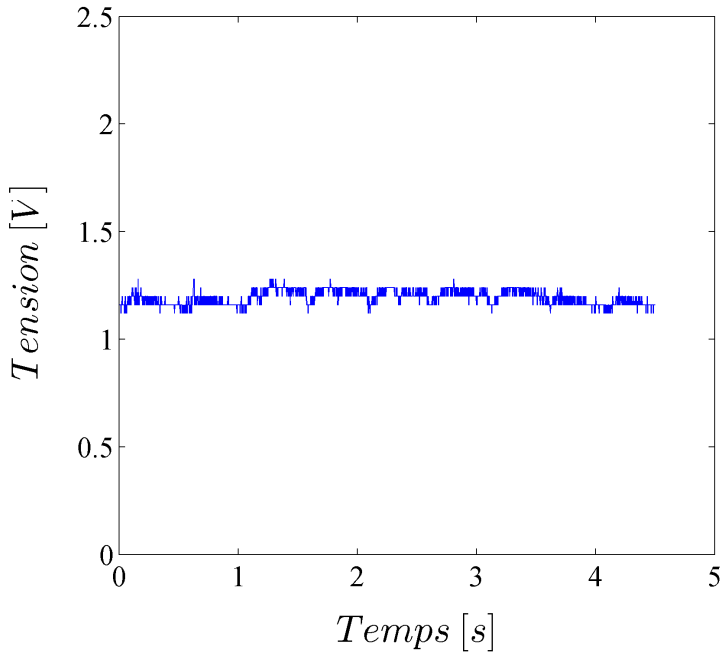


FIG. V.25: Signal lumineux enregistré à l'aide d'un oscilloscope traversant le micro-canal et l'émulsion en formation converti en tension : Type 1.

Chaque enregistrement présenté dans les figures V.25, V.27, V.28, correspond au signal mesuré dans une position donnée dans le micro-canal. Un signal égal à 0 Volt correspond à l'absence de passage de la lumière (cette tension n'a jamais été relevée durant les essais). Une tension de 2,2 Volt correspond au passage du faisceau laser à travers l'épaisseur du PMMA en dehors de la zone gravée (absence de canaux, d'émulsion ou d'eau). En présence d'huile de tournesol pure dans les canaux la tension relevée est sensiblement égale à 2,2 Volt. En effet les indices de refraction de l'huile de tournesol et celui du PMMA sont très proches (n_{PMMA} =1,49

et n_{huile} = 1,47). Sur la figure V.25 est représenté le cas type de passage, dans le canal du micro-mélangeur, de la phase aqueuse dispersée ; cet enregistrement ne présente pas de singularité. L'atténuation correspondante (I_t/I_0) est dans ce cas proche de 50 %.

Un intérêt a également été porté à la détermination de la fréquence optimale d'acquisition de l'oscilloscope. La fréquence d'acquisition détermine la qualité d'échantillonnage du signal et donc de son enregistrement par l'oscilloscope. La figure V.26 réunit les essais de lumière laser collectée, avec plusieurs fréquences d'acquisition, réalisés à travers le PMMA en dehors de la zone gravée, aussi à travers le canal rempli d'huile de tournesol ensuite rempli d'eau pure. A l'issue de ce test on conclut sur l'influence très négligeable de la fréquence d'acquisition. On sait qu'un oscilloscope enregistre qu'un seule fenêtre à la fois du signal dont la longueur est de 10 unité de temps. Afin d'en capturer une longueur du signal suffisante on a choisi une fréquence de 500 Hz.

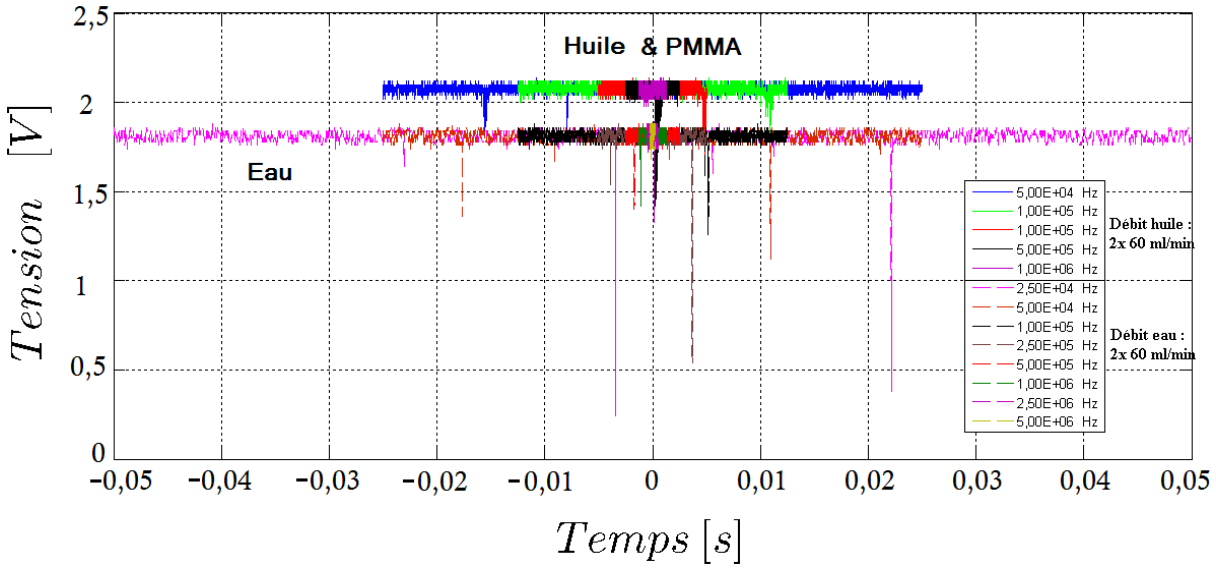


FIG. V.26: Tests en fréquence de la lumière laser collectée à travers le PMMA du micro-canal, l'eau pure et l'huile de tournesol pure.

En ce qui concerne les deux autres cas comme représenté sur les figures V.27 et V.28, on remarque la présence de paliers avec une valeur basse du signal, preuve d'une forte atténuation du signal lumineux par la présence de cette phase dispersée. On note respectivement une atténuation (I_t/I_0) de 59 % pour le 2e cas (voir la figureV.27) et de 68 % pour le 3e cas (voir la figureV.28). Ces paliers indiquant la présence de phase dispersée, sont entrecoupés de périodes correspondant à des signaux très faiblement atténués (tensions élevées), indiquant l'absence de

perturbations optiques importantes et donc l'absence de passage de phase dispersée dans cette zone, à cet instant. Ces paliers supérieurs, dont la tension représente 80 à 95 % de la tension à travers l'huile pure, indiquent clairement une présence majoritaire d'huile de tournesol.

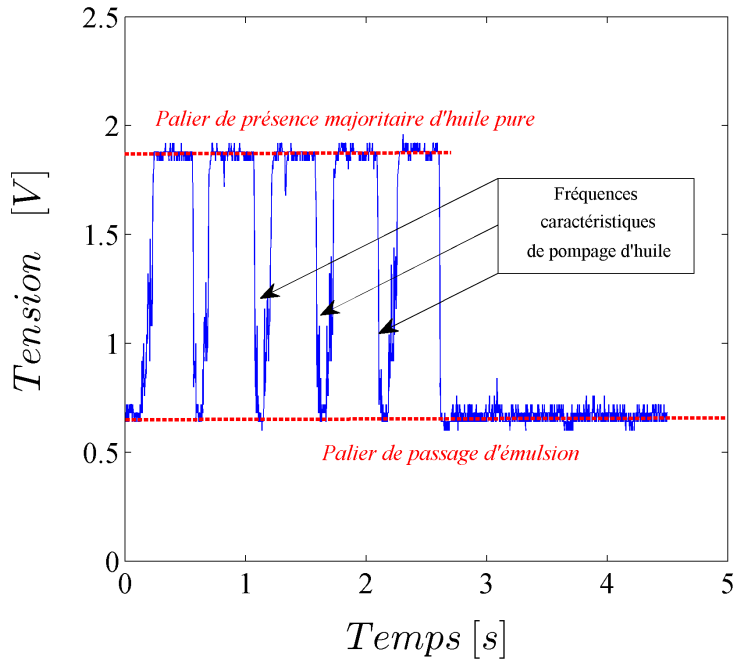


FIG. V.27: Signal lumineux enregistré à l'aide d'un oscilloscope traversant le micro-canal et l'émulsion en formation converti en tension : Type 2.

Un programme de sélection de données a été développé sous MatLab afin d'éliminer lors de l'analyse les périodes d'enregistrement du signal correspondant à des singularités. Par singularité, on entend les périodes correspondant au passage de la phase huileuse uniquement du fait des irrégularités de débit engendrées par les pompes employées. Ces périodes sont générées au cours du cycle de remplissage et de vidange des pistons de la pompe. Elles correspondent à des périodes transitoires où l'écoulement n'est pas caractéristique d'une phase de fractionnement. La fluctuation de l'efficacité du fractionnement constatée dans cette étude dans les micro-systèmes est due à la technologie des pompes utilisées : celles-ci comprennent deux pistons ce qui n'est pas suffisant pour s'affranchir des fluctuations temporaires de débits. Afin de caractériser les phases efficaces de fractionnement, seules les parties du signal correspondant à un régime d'émulsification sont considérées.

a) Algorithme de post-traitement

Les enregistrements bruts affichés sur les figures V.25, V.27 et V.28 sont présentés sous forme d'histogrammes sur la figure V.29. Ces histogrammes répertorient le nombre de différents ni-

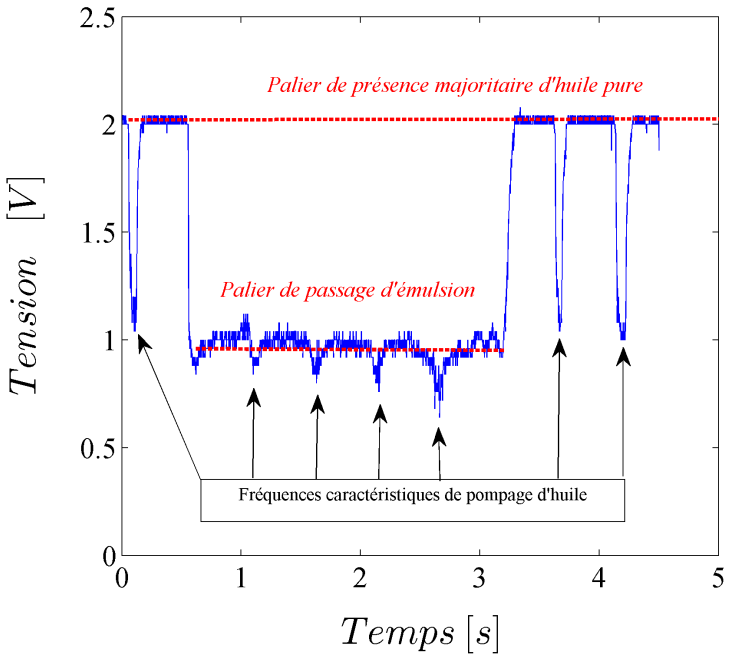


FIG. V.28: Signal lumineux capturé par oscilloscope traversant le micro-canal et l'émulsion en formation converti en tension : Type 3.

veaux de tensions enregistrés au cours d'une acquisition. Ils ont été tracés avec des largeurs de classes de 0,1 Volt, ce qui permet d'obtenir un total de 23 classes réparties dans l'intervalle de tension [0 - 2,2 Volt].

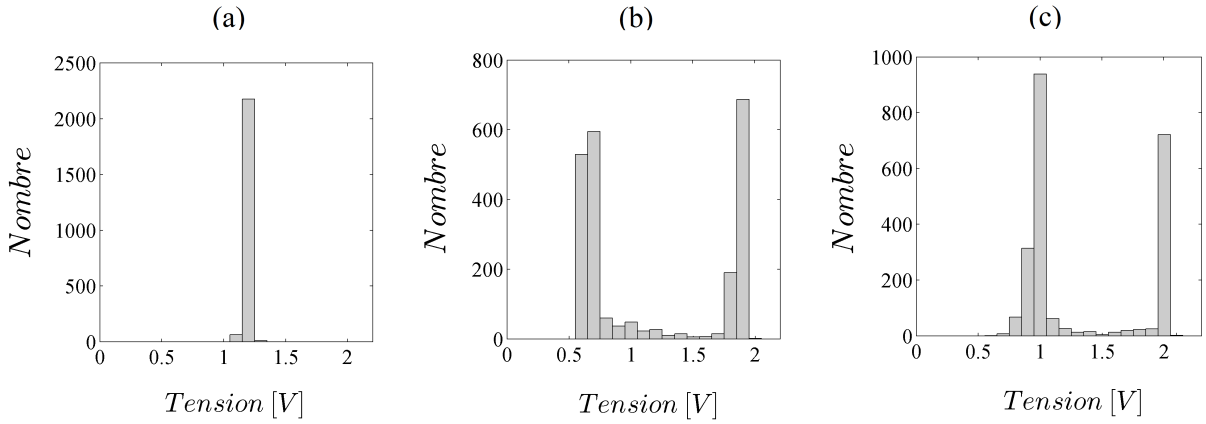


FIG. V.29: Interprétation statistique des signaux de la lumière laser collectée.

Le programme de traitement du signal écrit sous MatLab a pour objectif, comme mentionné plus haut, de discriminer de manière automatique les périodes des enregistrements relatives au passage d'émulsion (interface eau-huile) de ceux correspondant au passage d'huile pure. Ce programme permet d'une part de déterminer la tension offrant **la plus grande occurrence**,

sur la figure V.30 celle-ci est représentée ici en pointillés vert, et d'autre part de calculer la moyenne de la tension mesurée pendant une période excluant toute singularité. Pour ce faire, le programme a été pensé de la manière suivante. Sachant que la lumière est très faiblement influencée en présence de la phase continue (huile de tournesol), l'atténuation de la lumière laser (I_t/I_0) ne survient qu'en présence de la phase dispersée. On a fixé une tension limite T_L = 1,7 Volts, au-dessous de laquelle on présume la présence d'une phase dispersée. Au-dessus de cette limite, on considère que la présence d'interface est négligeable et que seule l'huile s'écoule (voir la figure V.30). Le test opéré pendant l'exécution du programme est le suivant :

$$Test = \frac{\Sigma Tension_{\,(\geq 1{,}7\,V)}}{\Sigma Tension} \tag{V.11}$$

avec :

- $\Sigma Tension_{\,(\geq 1{,}7\,V)}$: représente le nombre de valeurs de tension supérieures ou égales à 1,7 Volts. Le segment de valeurs de tension supérieures à 1,7 représente 30 % de l'intervalle [0 - 2,2 Volts]. Il correspondant aussi à la zone non hachurée sur la figure V.30.
- $\Sigma Tension$: représente 100 % des valeurs de tension enregistrées lors d'un seul test, soit 2500 valeurs.

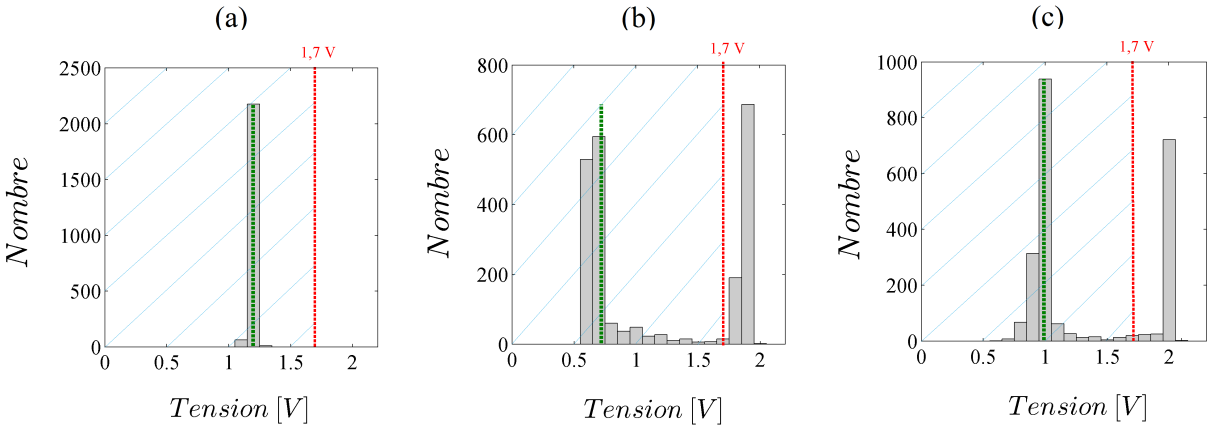


FIG. V.30: Post-traitement.

Le test V.11 permet de répertorier, parmi les 2500 valeurs enregistrées, les tensions dans l'intervalle 0 - 2,2 Volts de valeurs supérieures à la tension seuil (1,7 Volts). Le test V.11 exécuté, deux cas de figures s'offrent à nous :

1. Test ≥ 0,7 : Cette partie représente 30 % de l'intervalle total [0 2,2 Volts]. Dans le cas où le nombre de ces valeurs de tensions (≥ 1,7 Volts) représente 70 % des 2500 points, on procède au calcul de la moyenne du signal total enregistré.

2. Test < 0,7 : dans le cas contraire, on procède au calcul de la moyenne des valeurs de tension inférieures à 1,7 Volts uniquement.

Le présent test est d'autant plus pertinent pour des cas similaires à celui illustré par la figure V.30-(b). En effet, **le programme permet d'éviter de prendre systématiquement la tension de plus grande occurrence surtout lorsque celle-ci correspond au passage de l'huile seulement** (1,9 Volts correspondant à une présence majoritaire d'huile de tournesol pure). Il faut comprendre qu'ici la tension qu'il est conseillé de prendre en compte et qui correspond à la présence de l'interface eau-huile (émulsion) est celle portant une ligne en pointillé de couleur vert.

⚠

On conclut que cette méthodologie permet d'éliminer, dans les calculs, les périodes des signaux présentant un artefact dû aux pompes. Si le signal présente une tension plus élevée que 1,7 Volt durant une période de durée supérieure à 70% de la fenêtre temporelle de mesure, on considère alors qu'il ne s'agit pas d'un artefact ou pas uniquement d'un artefact mais qu'il s'agit de l'observation d'une absence réelle de phase dispersée pendant une durée significative de l'enregistrement. Une tentative d'analyse des signaux de lumière laser collectée a été menée (voir l'Annexe .6).

V.5.2 Conditions de mise en application de la lumière laser collectée à travers le micro-canal "300-600"

Nous avons défini quatre tests types afin de mettre en œuvre de la technique de lumière laser collectée (voir le tableau V.3). Le test (A) étant considéré comme un test de référence, chacun des autres tests montre une variation d'un paramètre à savoir la vitesse débitante de la phase dispersée pour le Test (B), la tension inter-faciale pour le Test (C) ou la viscosité de la phase continue, la tension inter-faciale et la vitesse débitante de la phase dispersée dans le cas du Test (D). Les conditions d'expérimentation lors de ces 4 tests affichés sur le tableau V.3 sont détaillées ci-dessous :

- Le test (A) représente le test de référence. La phase continue ne contient pas d'émulsifiant et la fraction volumique en eau est faible (φ_e = 8,7%),
- Le test (B) : diffère du test référence uniquement par une vitesse débitante de la phase dispersée plus importante. Ceci se traduit par une fraction volumique d'eau qui est nettement supérieure (φ_e = 14 %),

– Le test (C) : par rapport au test (A) de référence, la tension inter-faciale ($\gamma_{e/h}$) a été diminuée de 58 % par l'ajout d'émulsifiant (0,3 % en masse de Span83) et le débit d'émulsion est plus faible.

– Le test (D) : par rapport au test de référence, correspond à un abaissement à la fois de la tension inter-faciale ($\gamma_{e/h}$) de 54 %, et de la viscosité dynamique de la phase continue (μ_h) de 23 %. Le débit d'émulsion formée est plus élevé.

Tests	**(A)**	**(B)**	**(C)**	**(D)**
Phase continue (huile de tournesol)				
	huile	huile	huile + 0,3 $wt.\%$ de Span83	huile + 5 $wt.\%$ de Butan-1-ol
Q_h [mL/min]	72,55	72	62,84	76,23
ρ_h [g/L]	865	865	862	857
μ_h [mPa.s]	52,2	52,2	52,2*	40,4
$Re_h = \frac{\rho_h\, v_h\, Dh_h}{\mu_h}$	33,55	33,23	29	34,9
Phase Dispersée (eau)				
Q_w [mL/min]	6,94	12,68	9,06	13,85
ρ_e [g/L]	998	998	998	998
μ_e [mPa.s]	3,3	3,3	3,3	3,3
$Re_e = \frac{\rho_e\, v_e\, Dh_e}{\mu_e}$	384,78	703,04	502,33	767,91
Emulsion				
Q_{emul} [mL/min]	79,49	82,68	71,90	90,08
φ_e [%]	8,71	14,97	12,6	15,38
$\gamma_{e/h}$ [mN/m]	27,6	27,6	11,7	12,8
$d_{\overline{1/d}}$ [μm]	13,48	13,42	12,2	16,23
d_{10} [μm]	20,78	21,79	20,46	32,48
d_{32} [μm]	46,75	57,4	52,36	65,27
$k^{-1} = \sqrt{\gamma_{e/h}/\rho_h\, g}$ [mm]	1,72	1,72	1,17	1,23

$*$ On suppose que la viscosité dynamique de l'huile de Tournesol avec 0,3 $wt.\%$ en masse de Span83 demeure inchangée.

TAB. V.3: Caractéristiques des quatre cas expérimentés.

	Test (A)	**Test (B)**	**Test (C)**	**Test (D)**
Force visqueuse ($\frac{\mu_h\, v_m}{d_g}$) [N]	4,62e+03	4,70e+03	4,25e+03	2,59e+03
e = $\frac{Test_{Ref.}-Test_i}{Test_{Ref.}} \times 100$	Réf.	+2 %	-8 %	-44 %
Force inter-faciale ($4\,\pi\, d_g\, \gamma_{e/h}$) [N]	7,21e-06	7,56e-06	3,01e-06	5,22e-06
e = $\frac{Test_{Ref.}-Test_i}{Test_{Ref.}} \times 100$	Réf.	+5 %	-58%	-28 %
Force d'inertie ($\rho_e\, v_m^2\, S_h^2$) [N]	1,22e-03	1,38e-03	9,95e-04	1,56e-03
e = $\frac{Test_{Ref.}-Test_i}{Test_{Ref.}} \times 100$	Réf.	+13 %	-18 %	+28 %
d_{10} [μm]	20,78	21,79	20,46	32,48

TAB. V.4: Forces intervenant dans le fractionnement par les jets impactants confinés.

Une analyse des résultats des quatre cas types permet d'établir des interprétations physiques basées sur l'estimation des forces intervenant dans le procédé étudié ici. Pour ce faire, on recense trois forces intervenant principalement dans le procédé d'émulsification par jets impactants (voir le tableau V.4). L'analyse de ce tableau V.4 nous permet de comparer les trois forces gouvernant le fractionnement dans les quatre cas investigués ici :

- Le test (B) correspond à une force inertielle augmentée de 13 % par rapport au test de référence (A). Le test (B) correspond par ailleurs à une fraction d'eau plus élevée (+72 %). Les deux variations combinées de ces paramètres ne permettent pas d'abaisser le diamètre des gouttes d'émulsion. Il faut toutefois noter que le flux de gouttelettes (nombre de gouttelettes / temps) est beaucoup plus important dans le test (B) ce qui correspond à un travail de fractionnement plus important.

- Dans le test (C), les variations combinées de la tension inter-faciale qui est abaissée et d'une force d'inertie plus faible (- 18 %) conduisent à un maintien du diamètre moyen des gouttes au niveau de celui obtenu pour le test (A).

- Dans le test (D), l'augmentation des forces d'inertie (+28 %) et une tension inter-faciale abaissée ne permettent pas de compenser l'effet de la diminution des forces visqueuses (-44 %). Le diamètre moyen des gouttes est significativement plus élevé (+56 %) par rapport au test de référence (A). Par ailleurs, il faut noter que le débit d'eau est plus important que dans le test (A), sur cet aspect comparativement au test (B) le travail de fonctionnement est moins efficace.

⚠

On peut conclure que les forces de viscosité ont un rôle prépondérant sur l'efficacité du fractionnement. Le débit d'émulsion et celui de la fraction d'eau peuvent être modulés tout en conservant la valeur du diamètre de gouttes du test de référence (test (A)), en jouant sur la tension inter-faciale (addition d'une faible quantité de Span83).

Une diminution significative de la viscosité de la phase lipidique conduit à une augmentation marquée du diamètre de gouttelettes. Dans ce cas la diminution de la tension inter-faciale et l'augmentation des forces d'inertie ne permettent pas de compenser une baisse si significative de l'efficacité de fractionnement.

V.5.3 Visualisation à haute fréquence

Dans cette section, des visualisations à haute fréquence pour les quatre cas explicités auparavant ont été réalisées. Une synchronisation a pu être établie entre les acquisitions d'images et l'enregistrement des signaux de pressions relatives d'entrées des deux phases (voir les figures V.31, V.32, V.33 et V.34). Cette synchronisation est nécessaire afin d'écarter toute anomalie liée au pompage. Pendant cette étude, on a considéré uniquement la partie stable des signaux (régime établi), à cet effet la partie du signal de pression grisée est écartée.

Sur un aspect purement hydrodynamique, on répartit les quatre tests en deux groupes. Les tests (A) et (C) qui présentent un enroulement de la phase dispersée (dispersion eau dans huile) d'un aspect lisse. Une différence apparait au niveau de la structure caractéristique formée par un film d'eau (phase dispersée). En effet, ce film adoptant cette courbure caractéristique est plus écarté dans le cas (C), atteignant 2 Dh ($Dh = 600\ \mu m$) de part et d'autre du croisement (voir la figure V.33). Pour le cas Référence (A) cette structure caractéristique est alors cantonnée au centre et verticalement elle mesure à peine une longueur de 1,5 Dh (voir la figure V.31). Le débit d'eau étant plus faible pour ce groupe, la structure en enroulement qui en résulte se plaque contre la paroi côté admission d'huile. Le second groupe est formé du test (B) et (D) (voir les figures V.32 et V.33). Ce groupe présente un enroulement avec un aspect en surface moins lisse par rapport aux cas précédents. En effet, cet aspect est lié à une vitesse débitante de la phase dispersée (eau) plus importante. Comme expliqué précédemment (§ V.1.2), l'écoulement plus complexe fait apparaitre en surface de cet enroulement des structures d'écoulement irrégulières.

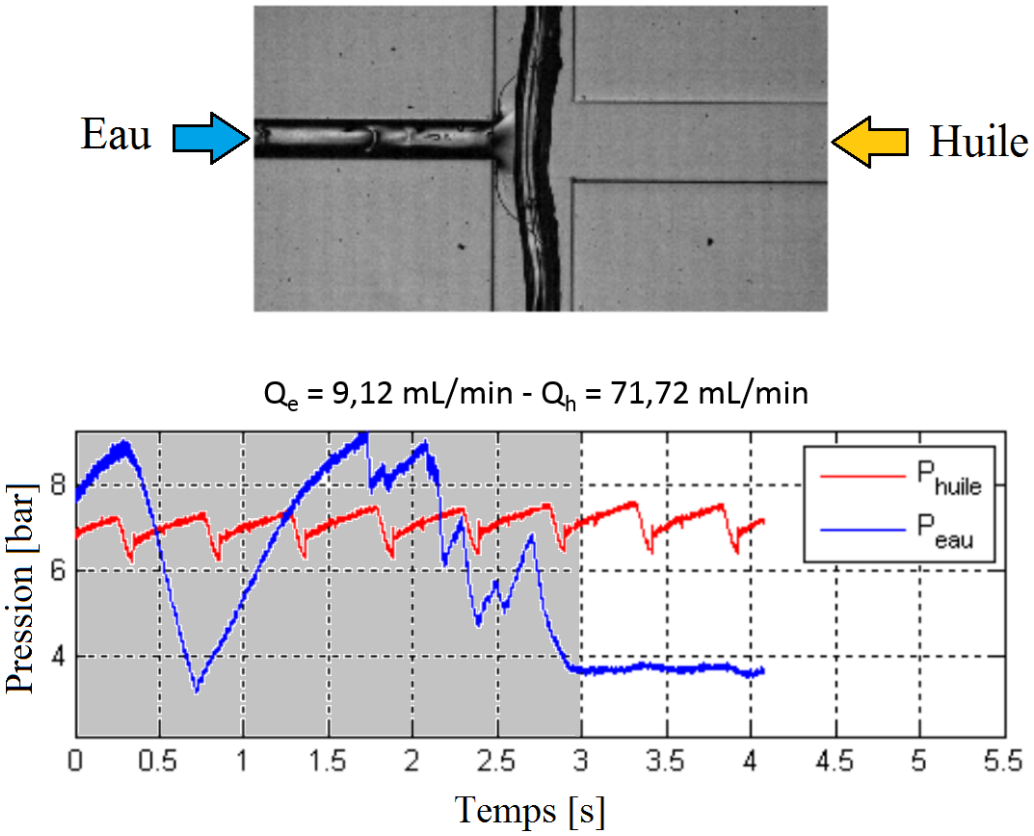


FIG. V.31: Test (A).

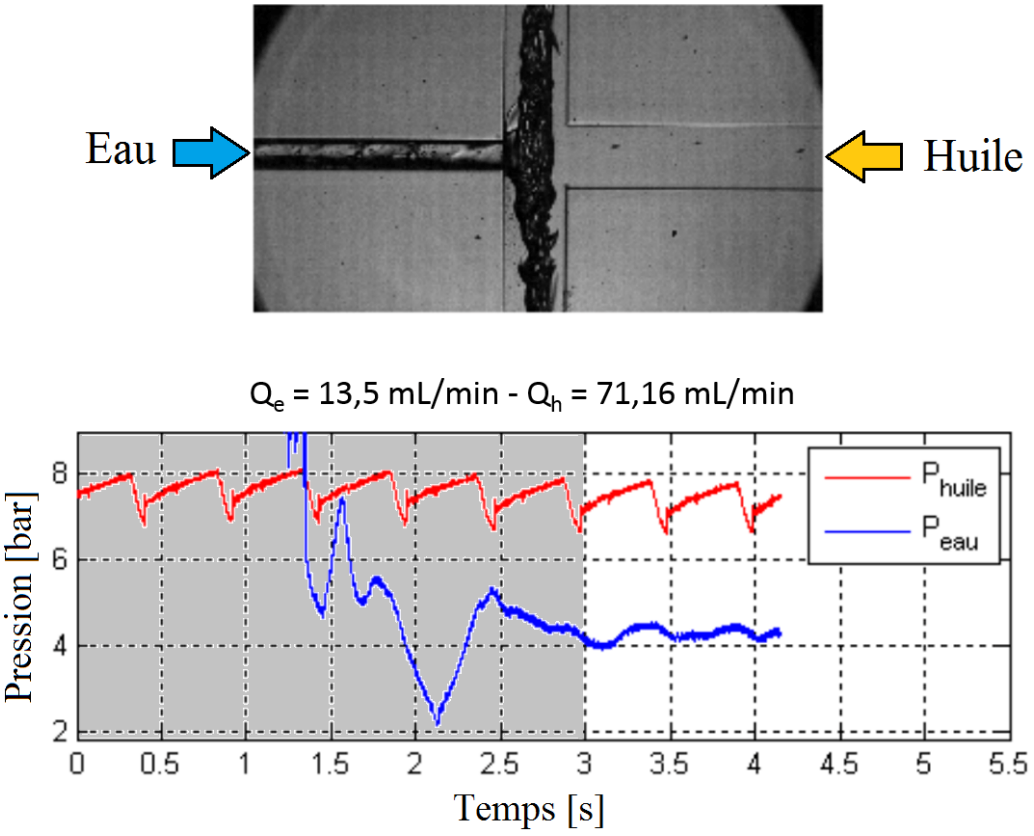


FIG. V.32: Test (B).

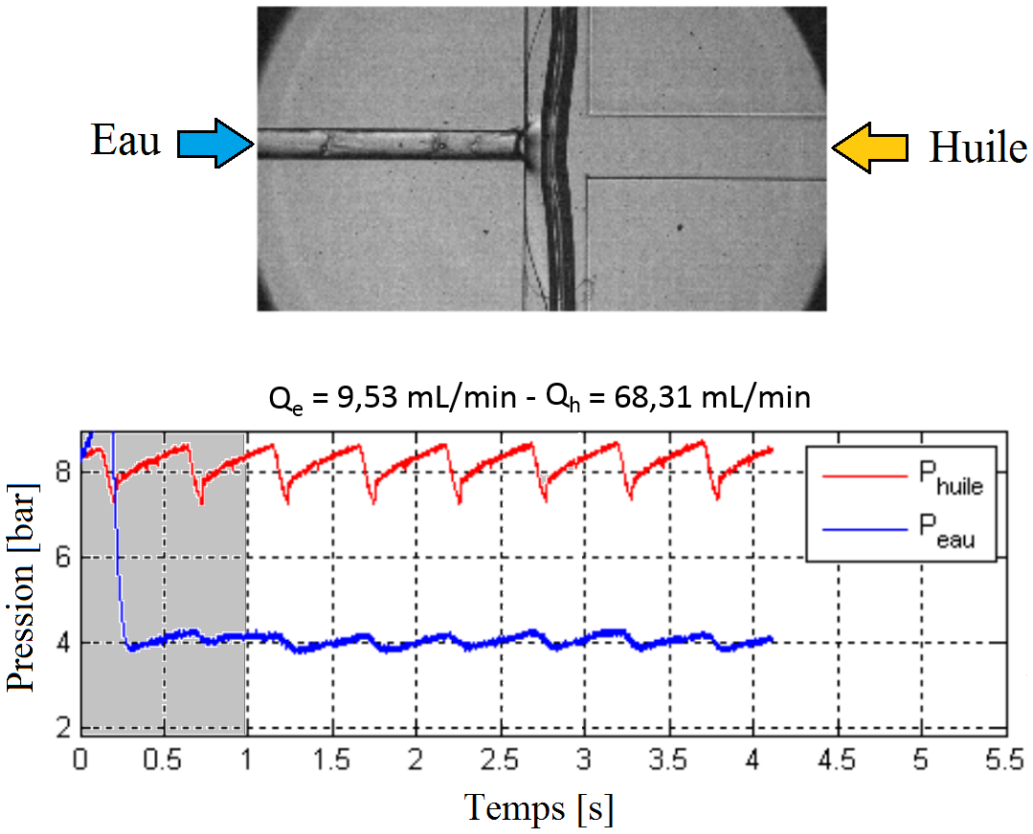


FIG. V.33: Test (C).

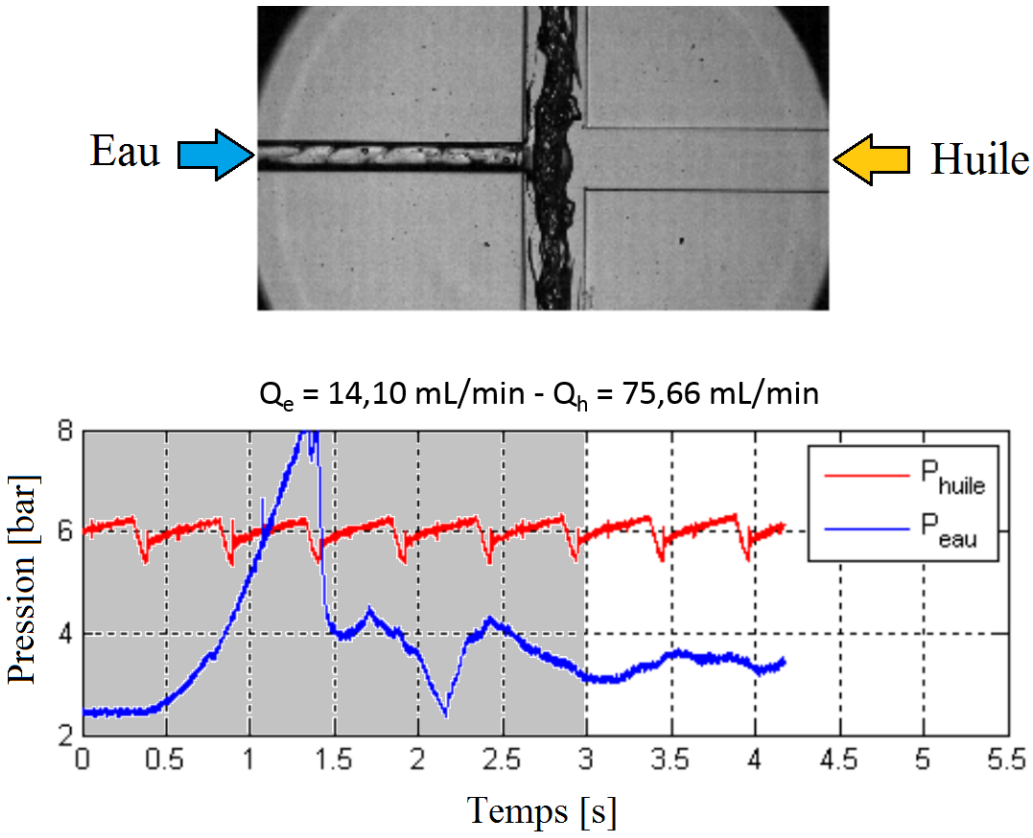


FIG. V.34: Test (D).

V.5.4 Cartographies de lumière laser collectée

La détermination de la zone caractéristique où se produit principalement le fractionnement liquide-liquide constitue un point stratégique dans cette étude. Aussi la cartographie réalisée à partir de la lumière laser collectée représente un enjeu majeur.

La mesure de la lumière polarisée collectée, à travers le micro-canal transparent en mode d'émulsification, permet de détecter la présence de gouttelettes (interface eau - huile). Comme précisé dessus (§ V.3.1), une durée d'acquisition du signal suffisamment longue est choisie afin de limiter l'influence des fluctuations locales de l'écoulement. Les tests de lumière laser collectée sont réalisés sur une durée de temps suffisante afin d'obtenir une stabilisation des débits et des pressions. Ajouté à cela, cette lumière laser polarisée exclusivement verticalement est très sensible à la présence de formes sphériques (gouttes et gouttelettes) et cylindriques (gouttelettes étirées et allongées par le gradient de vitesse dans le micro-canal). Les expériences menées à l'aide de cette technique consistent à cartographier la zone active (au niveau du croisement du micro-canal et dans les canaux de formation de l'émulsion) afin de représenter la variable "$ln(I_t/I_0)$" au niveau du canal de formation de l'émulsion sur une distance de 9 Dh (Dh = 600 μm) en aval du croisement. En d'autres termes, ces cartographies expriment la représentation du produit "$\alpha_{ext}\ h$" équivalant à cette expression : $h\ \ \Sigma_i \eta_i \left(\frac{\pi\, d_{g,i}}{\lambda}\right)^2$ (voir l'équation III.6, paragraphe § III.2.4). Pour cette étude de lumière laser collectée, les conditions expérimentales des 4 cas de visualisations avec la caméra rapide (tableau V.3) ont été reproduites.

Les cartographies obtenues dans un premier temps sont réunies sur la figure V.36. En présence de la symétrie des canaux de sortie, nous nous somme intéressé à un seul canal de formation de l'émulsion. Un test de détermination de la nature de la diffusion a été réalisé. Pour ce faire, la figure V.35 a été employée en rapportant les teneurs maximales en gouttes contenues par m^3 d'émulsion sachant qu'une fraction volumique de 17 % de la phase dispersée n'est jamais dépassée. Les deux lignes continue et discontinue représentent la limite entre une diffusion multiple et une diffusion simple.

Dans le cas (A), le premier résultat de jets impactants montre la présence d'interfaces eau-huile représentées par une zone sombre très allongée qui prend naissance juste en sortie du canal d'eau. Cette zone est relativement large au niveau du croisement et s'amincit par la suite en étant bien plaquée contre la paroi d'admission d'huile de tournesol. Cette description concorde significativement avec les images obtenues avec la caméra rapide (voir les figures V.31 et V.11).

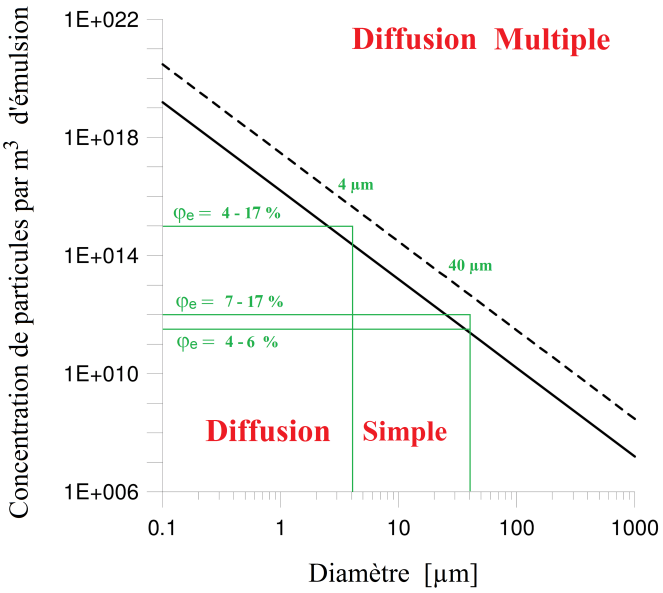


FIG. V.35: Représentation de la limite entre la diffusion simple de la diffusion multiple [Calabria *et al.*, 2009].

Dans le cas (B), avec un débit d'eau plus important, l'émulsion couvre une zone de largeur proche de deux fois celle du cas de référence. Le rapport des vitesses superficielles vs_{eau}/vs_{huile} augmente de 9,6 % à 17,6 % du cas (A) au cas (B) (voir la figure V.32) et le flux de l'émulsion obtenue possède une répartition plus homogène de l'eau par rapport au cas (B).

Dans le cas (C) avec une tension inter-faciale plus faible (baisse de 57 % par rapport au cas de référence), il est constaté la présence d'interfaces eau-huile (gouttelettes d'eau) couvrant une zone, similairement au cas (A) de référence, à proximité de la paroi opposée (côté admission d'huile) et pratiquement pas de dispersion ailleurs. En raison d'un maillage de mesure de la lumière laser collectée de 150 μm insuffisant, la largeur du flux de la dispersion est caractérisé de manière grossière, il occupe un tiers de la largeur du canal.

Enfin, le test (D) montre le cas d'un flux de dispersion qui envahit deux tiers de la largeur du canal (2/3 Dh), et occupant sensiblement le dernier tiers. Ce cas montre un champ d'écoulement plus désordonné montré par [Segré et Silberberg, 1962] et de ce fait diffère grandement du cas de collision frontale de référence cas (A).

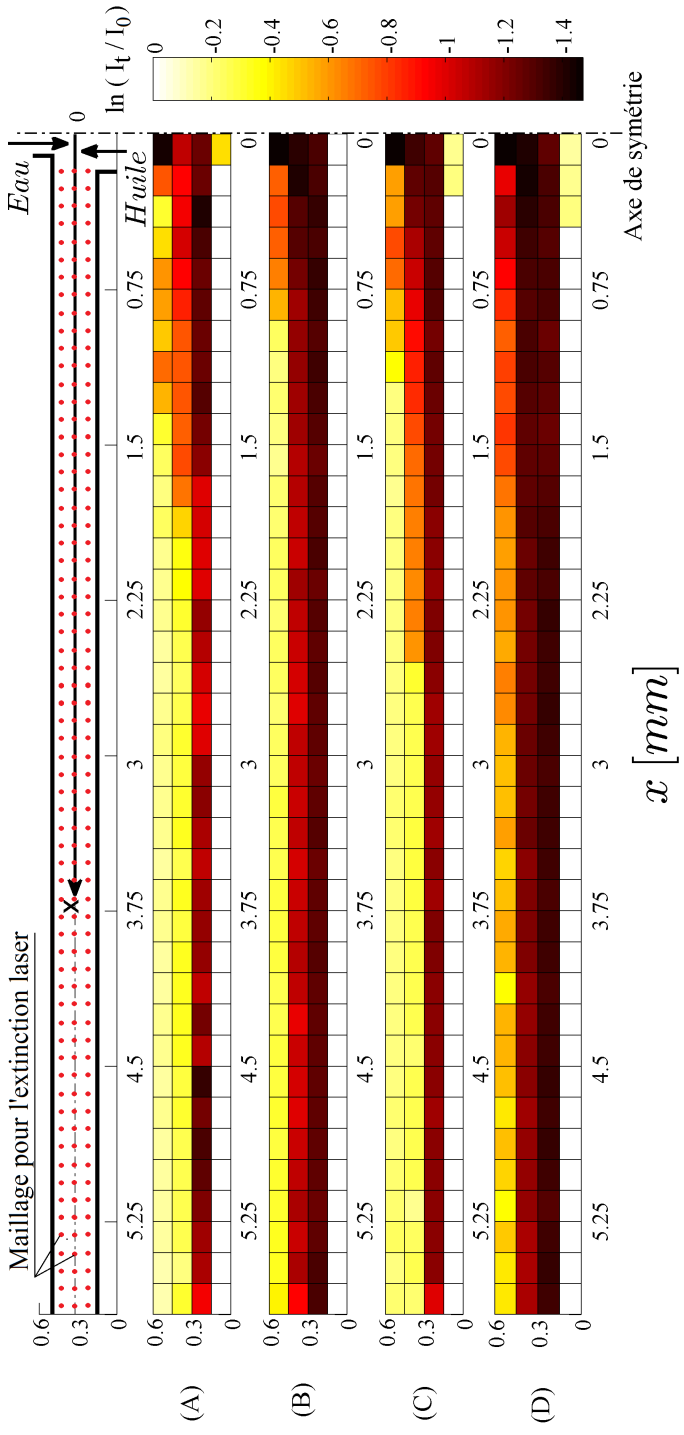


FIG. V.36: Les configurations d'écoulement liquide-liquide, obtenues par la cartographie de la collecte de la lumière polarisée à travers le canal de sortie de l'émulsion.

Si on superpose l'ensemble des signaux lumineux laser collectés pour les quatre cas, cela permet de tracer la figure V.37. Sur l'axe des ordonnées est représenté le logarithme du rapport de l'intensité lumineuse transmise sur celle incidente et en abscisses la position dans le micro-canal avec l'origine de cet axe étant le centre de symétrie du micro-canal on s'intéresse ici aux signaux collectés dans les deux canaux de sortie. Dans le sens de la largeur du canal de 600 μm, trois points de mesures distants de 150 μm sont effectués. On considère uniquement les points de la zone centrale afin de tracer la figure V.37. Dans la zone centrale on a localisé précédemment l'enroulement de la phase dispersée. Lors de ces mesures, le faisceau laser traverse cette structure.

Une forte atténuation de la lumière laser est observée, pour l'ensemble des tests, au niveau du croisement, c'est-à-dire sur une longueur de 2 mm de part et d'autre du croisement. Cette zone qui enregistre une forte atténuation de l'intensité lumineuse est nommée zone active. Cette zone correspond à une forte valeur du coefficient d'atténuation α_{ext} (voir § III.3.4, III.6). Ce dernier intègre le nombre de gouttelettes et leur diamètre respectif : α_{ext} = f(η_i, d_g).

Le signal de lumière laser collecté se stabilise dans les quatre cas à partir d'une distance de 3 mm de part et d'autre du croisement. Cela indique une homogénéisation de la densité des gouttelettes d'eau dans l'émulsion.

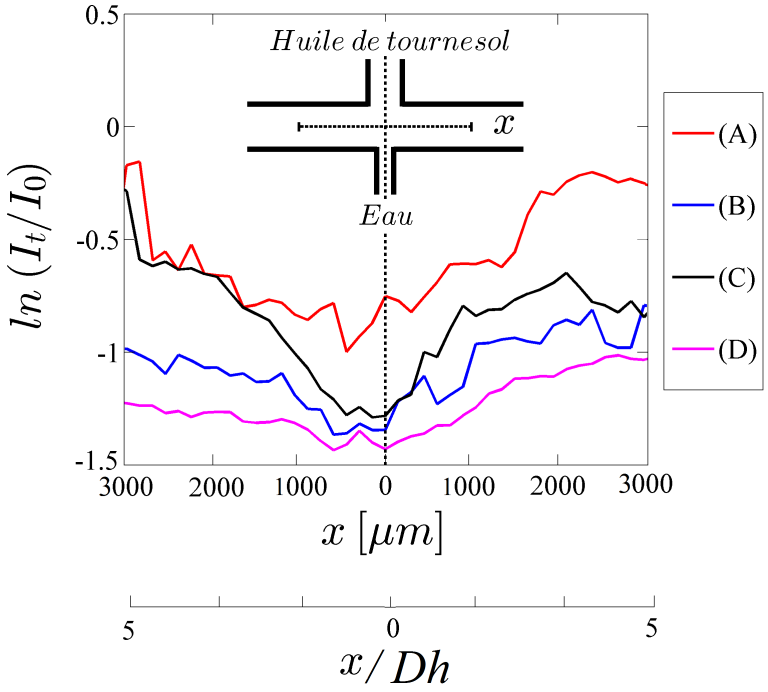


FIG. V.37: Extinction laser au niveau du croisement du micro-canal.

V.6 Conclusion

Les images résultant des visualisations à haute fréquence montrent une phase dispersée (eau) formant une structure hydrodynamique, en forme d'un enroulement, lors de son admission au niveau du croisement. Cet enroulement prend naissance au croisement et se prolonge ensuite par un mouvement combiné de rotation et de translation (advection) vers les deux sorties perpendiculairement aux admissions d'eau et d'huile de tournesol. Pour des débits faibles, cet enroulement de la phase dispersée se plaque contre la paroi du canal d'émulsion (côté admission d'huile de tournesol). La localisation de cette structure hydrodynamique évolue vers le centre du canal d'émulsion à mesure que le débit de la phase dispersée augmente.

L'analyse dimensionnelle, appliquée sur l'ensemble des paramètres variés, a permis de mettre en forme un modèle exprimant le diamètre moyen "d_{10}" en fonction des paramètres intrinsèques des deux phases à savoir : le débit "Q", la vitesse débitante "v", la viscosité "μ", la masse volumique "ρ" et la tension inter-faciale "$\gamma_{e/h}$". On confirme également la dominance du nombre capillaire et du rapport μ_h/μ_e sur la dispersion en employant ce procédé. Un second modèle basé sur la conservation de l'énergie mécanique dans le canal a permis également de fournir une prédiction du diamètre obtenu à travers une relation linéaire du nombre d'Ohnesorge "Oh" et un nombre capillaire équivalent "Ca" adapté au croisement.*

La méthodologie de post-traitement des signaux de collecte de la lumière laser enregistrés est réalisée à l'aide d'un algorithme. Ce dernier permet de s'affranchir dans les calculs des périodes des signaux présentant une absence d'émulsion ou encore mieux un artefact dû aux pompes.

La détermination de la zone active, c'est-à-dire le lieu du fractionnement dans le micro-canal, est cruciale. Pour ce faire, une première technique est employée. La visualisation à haute fréquence a vu ses limites palliées par la collecte locale de lumière polarisée pour investiguer dans cette zone active située au croisement du micro-canal "300-600". Quatre cartographies sont obtenues pour les quatre cas types, dont le maillage carré appliqué mesure 150 μm de côté. La zone active est estimée à 3,5 Dh (2 mm) de part et d'autre du croisement.

Ce travail a permis également de confronter qualitativement les deux techniques sur ces cas types. Les résultats permettent de confirmer une concordance de l'espace occupé par la phase dispersée dans le canal d'émulsification pour les deux techniques. Ceci est possible en comparant les cartographies de la lumière laser collectée et les images issues de la caméra à haute fréquence d'aquisition.

Grâce à l'acquisition rapide, un écoulement enroulé a été mis en évidence dans le micro-canal "300-600" suivi d'un mouvement de convection transportant l'émulsion vers la sortie. Cette combinaison d'écoulements rotation-advection va être exploitée et appliquée dans le chapitre suivant pour favoriser la fragmentation d'une émulsion déjà formée en amont. L'objectif du prochain chapitre sera donc de rapporter les essais de mise en série du micro-canal "300-600" utilisé pour produire une pré-émulsion avec le micro-canal "600-600", De ce montage, on attend une réduction de la taille moyenne des gouttelettes de la pré-émulsion.

Chapitre VI

Étude de l'émulsification à travers deux micro-canaux montés en série

Sommaire

VI.1 Introduction 140

VI.2 Montage en série de micro-canaux 141

VI.2.1 Outils statistiques 141

VI.2.2 Tests d'émulsification pour la configuration en série de micro-canaux . . 143

VI.2.3 Dépenses énergétiques induites par l'affinement de la dispersion 151

VI.2.4 Visualisations de l'écoulement diphasique au croisement 153

VI.3 Conclusion 158

VI.1 Introduction

Dans la perspective d'affiner davantage la granulométrie et respecter le cahier des charges initialement explicité en introduction de cette thèse, un montage en série des micro-canaux "600-600" et "300-600" a été réalisé. La procédure d'émulsification consiste à introduire l'émulsion de type eau dans huile (e/h), initialement formée au sein du micro-canal "300-600", dans le micro-canal à sections uniformes "600-600". Dans le premier micro-canal l'impact aura lieu entre les deux phases constituantes de l'émulsion (e/h). Le flux d'émulsion produit dans celui-ci sera divisé en deux flux afin d'alimenter le second micro-canal. Dans ce dernier, l'impact aura lieu donc entre deux flux identiques d'émulsions. Du fait de la connexion réalisée entre les deux micro-canaux, l'émulsion passe du premier au second micro-canal sans interruption de l'écoulement. Aucune pompe supplémentaire n'est nécessaire.

Pour affiner la granulométrie de la dispersion avec une telle configuration, on doit consentir à une dépense énergétique supplémentaire sous forme de chutes de pression résultant du doublement du nombre de micro-canaux.

Une comparaison des émulsions produites par les deux méthodes (micro-canal simple et micro-canaux en série) est opérée. Pour ce faire, des outils statistiques sont employés sur la granulométrie des émulsions obtenues.

Enfin, une mesure des propriétés de la tension et du courant aux bornes des pompes en entrée, nous a permis de dresser une estimation de la dépense énergétique.

VI.2 Montage en série de micro-canaux

La figure VI.1 représente les deux systèmes de micro-canaux montés en série. Le montage réalisé ici est similaire aux montages énoncés précédemment, l'unique différence réside dans le montage d'un micro-système supplémentaire. On distingue clairement que les deux sorties d'émulsions au niveau le micro-canal "300-600" sont directement connectées aux deux entrées du micro-canal suivant c'est à dire le micro-canal "600-600".

La disposition des capteurs de pression demeure inchangée c'est-à-dire sont laissés en entrée du premier micro-canal. La synchronisation des différentes acquisitions de données (pression, débit et imagerie à haute fréquence) est centralisée sur un PC à l'aide du logiciel LabView

VI.2.1 Outils statistiques

a) Fonction de densité de probabilité

Les dimensions de gouttelettes pour un échantillon d'une émulsion donnée sont considérées comme étant discrètes (non continues). Pour des procédés d'émulsification, la fonction de distribution de probabilité (p.d.f.) est un outil mathématique fréquemment employé [Pena, 2003]. Afin de permettre de décrire la distribution de tailles de gouttelettes avec **une expression mathématique continue**, un nombre de gouttelettes suffisant est nécessaire (voir le paragraphe § II.3.2, équation II.13). La distribution des tailles de gouttelettes obéit assez souvent à une distribution de probabilités de type : loi log-normale [Barnes, 1994, Pena, 2003], la densité de probabilité possède pour expression :

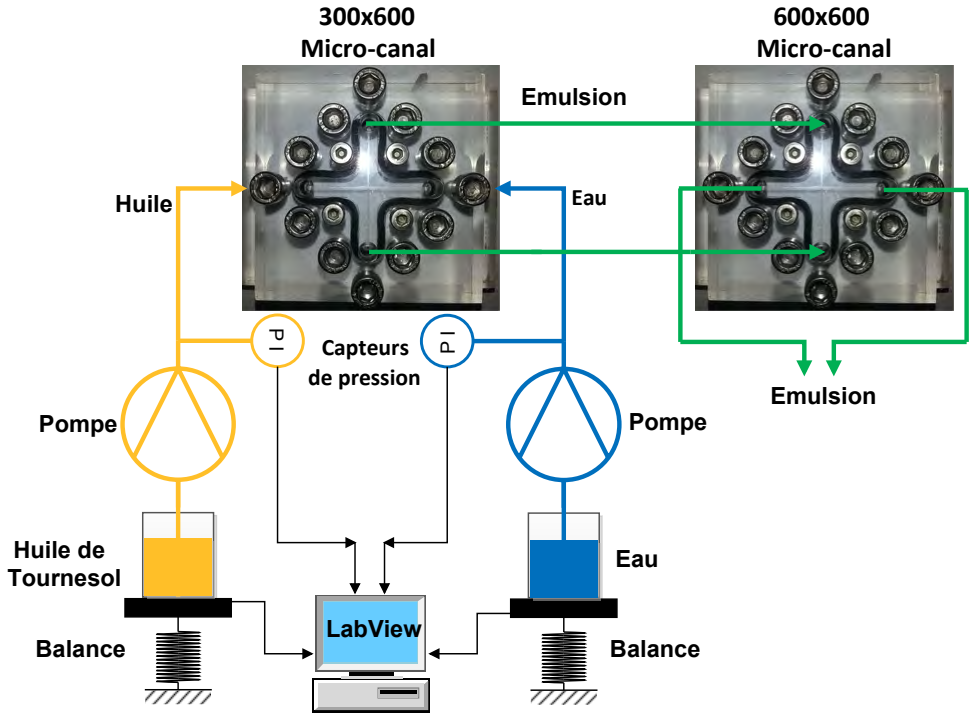


FIG. VI.1: Schéma de principe de la mise en série des micro-canaux "300-600" et "600-600".

$$f(d_g; m_{ln}, \sigma_{ln}) = \frac{1}{d_g\ \sigma_{ln}\ \sqrt{2\ \pi}}\ e^{-\frac{(ln(d_g)-m_{ln})^2}{2\ \sigma_{ln}^2}} \tag{VI.1}$$

Avec :

- d_g : diamètre d'une gouttelette dispersée en [μm],
- σ_{ln} : écart-type du logarithme du diamètre de gouttelettes ($\sigma_{ln} = ln\left(\sqrt{\frac{1+\sigma_g}{d_{10}^2}}\right)$),
- σ_g : écart-type des diamètres de gouttelettes,
- m_{ln} : moyenne arithmétique du logarithme des diamètres de gouttelettes ($m_{ln} = ln\left(\sqrt{\frac{d_{10}^2}{(\sigma_g+d_{10}^2)}}\right)$),
- d_{10} : moyenne arithmétique des diamètres de gouttelettes.

N.B. : les paramètres de la fonction log-normale, à savoir : l'écart-type (σ_g) et la moyenne arithmétique (d_{10}), sont calculés à partir de la distribution de tailles de gouttelettes obtenues expérimentalement. Cela signifie que la comparaison de la fonction log-normale et de la distribution de gouttelettes est établie pour des valeurs identiques de σ_g et d_{10}.

Afin de confronter les valeurs expérimentales de la fonction densité de probabilité (p.d.f $_{exp.}$) et la loi théorique de la fonction log-normale ($f(d_g; m_{ln}, \sigma_{ln})$) caractérisant la dispersion liquide-liquide [Pena, 2003], un critère permettant d'estimer cette erreur pour des valeurs non négatives de p.d.f $_{exp.}$ [Tarlet *et al.*, 2014] est formulé comme suit :

$$e_{p.d.f.} = \int_{d_g \neq 0} \left| p.d.f._{exp.} - \frac{e^{-\frac{(ln(d_g)-m_{ln})^2}{2\,\sigma_{ln}^2}}}{d_g\,\sigma_{ln}\,\sqrt{2\,\pi}} \right| dd_g \tag{VI.2}$$

On a choisi, lors de la représentation graphique de la fonction p.d.f., de calculer un nombre adimensionnel d*. Ce dernier résulte de la normalisation du diamètre des gouttelettes et se trouve compris entre 0 et 1 ($0 \leq d^* \leq 1$). La formule de d* est donnée par l'expression suivante :

$$d^* = \frac{Distri. - Min(Distri.)}{(Max(Distri.) - Min(Distri.))} \tag{VI.3}$$

Avec :

– Distri. : désigne la distribution des dimensions de gouttelettes pour un échantillon donné.

b) Fonction cumulative de densité de probabilité

La fonction cumulative de la distribution log-normale est donnée par l'expression ci-dessous :

$$c.d.f. = \frac{1}{2}\left[1 + erf\left(\frac{ln(d_g) - m_{ln}}{\sqrt{2}\,\sigma_{ln}}\right)\right] \tag{VI.4}$$

avec :

– erf : la fonction erreur de Gauss, sachant que : $erf(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-t^2}\,dt$.

La fonction cumulative permet de s'affranchir du problème de classes. Pour la p.d.f. on définit l'erreur relative moyenne par la formule suivante :

$$e_{c.d.f.} = \frac{1}{n_i} \sum_i \left| \frac{c.d.f_{\,exp.}(i) - c.d.f_{\,theo.}(i)}{c.d.f_{\,exp.}(i)} \right| \tag{VI.5}$$

avec :

– $c.d.f_{\,exp.}$: correspond aux valeurs de $p.d.f_{\,exp.}$ cumulées d'une classe à une autre (voir sur la figure VI.2, la correspondance d'une représentation en p.d.f. vers une c.d.f.) ,

– $c.d.f_{\,theo.}$: correspond aux valeurs de la fonction cumulative de distribution (VI.4) pour des valeurs de σ_{ln} et de m_{ln} tirées des dimensions des gouttelettes.

VI.2.2 Tests d'émulsification pour la configuration en série de micro-canaux

Six expériences d'émulsification ont été conduites en disposant les micro-canaux "300 - 600" et "600 - 600" en série, comme représenté sur la figure VI.1. Les détails des conditions expérimentales sont consignés dans le tableau VI.1.

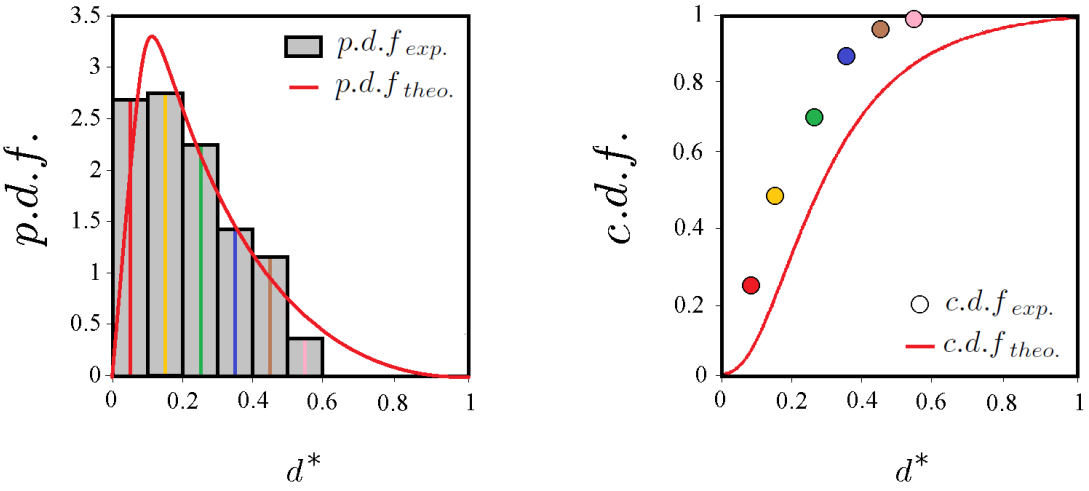


FIG. VI.2: Passage d'une représentation p.d.f. vers une représentation en c.d.f.

			"300-600"		"300-600" et "600-600"	
Tests	Span83 [% en masse]	Butan-1-ol [% en masse]	Q_h [mL/min]	Q_e [mL/min]	Q_h [mL/min]	Q_e [mL/min]
1	-	-	71,63	4,66	71,84	4,24
2	-	-	74,08	6,64	72,49	6,82
3	-	-	73,99	9,74	72,63	9,46
4	-	-	70,89	14,67	72,12	14,56
5	0,3	-	69,63	5,23	73,79	6,20
6	-	5 %	82,17	13,68	77,28	13,45

TAB. VI.1: Conditions d'émulsifications pour les deux configurations : simple et en série des micro-canaux.

N.B. : les débits d'eau (Q_e) et d'huile (Q_h) sont imposés aux entrées du micro-canal "300 - 600".

Cette série de tests d'émulsification a été réalisée dans le but de comparer le micro-canal "300-600" employé seul par rapport à sa disposition en série avec le micro-canal "600-600". Les quatre premiers tests (cellules grisées dans le tableau VI.1) représentent les tests effectués avec une phase continue sans Span83. Pour ces cas un seul paramètre a été varié c'est le débit d'eau (Q_e). Le test N°5 a été formé à partir des conditions du test N°1 avec une teneur de 0,3 % en masse de Span83 dans la phase continue (la tension inter-faciale a été abaissée). Le débit de la phase dispersée (Q_e) étant faible, on cherche à étudier l'influence de la tension inter-faciale ($\gamma_{e/h}$). Le test N°6 correspond aux conditions expérimentales du 4e test avec une phase continue contenant 5 % de Butanol (la tension inter-faciale et la viscosité ont été abaissées). Pour un débit important de la phase dispersée, on s'intéressera à l'influence sur le fractionnement lorsque la

tension interfaciale ($\gamma_{e/h}$) est abaissée de 54 % et la viscosité abaissée de 23 %.

a) Tests d'émulsification sans Span83

Ce test utilise une phase continue sans émulsifiant, ce qui est l'un des objectifs du cahier des charges de cette étude. Le débit de la phase dispersée (Q_e) a été varié de 4,24 mL/min jusqu'à 14,67 mL/min pour le micro-canal simple et de 4,24 mL/min jusqu'à 14,56 mL/min pour les micro-canaux en série, formant à la fin quatre gammes de débits. Le débit de la phase continue (Q_h) est maintenu constant à 72 ± 2 mL/min (voir le tableau VI.2).

Gam.	Config.	Q_e	Q_h	Min(d_g)	Max(d_g)	d_{10}	$\sigma_{ln(d_g)}$	$\mu_{ln(d_g)}$	$\mathbf{e}_{p.d.f.}$	$\mathbf{e}_{c.d.f.}$
		$[\frac{mL}{min}]$	$[\frac{mL}{min}]$	[μm]	[μm]	[μm]			[%]	[%]
1	Simple	4,66	71,63	8,3	113,0	26,2	0,83	-2,13	30,36	12,18
	Série	4,24	71,84	3,2	106.0	20,9	0,82	-2,09	10,88	12,15
2	Simple	6,64	74,08	8,0	100,2	32,2	0,66	-1,52	20,01	17,83
	Série	6,82	72,49	4,5	89,6	23,7	0,64	-1,69	32,76	15,55
3	Simple	9,74	73,99	7,5	87,5	32,7	0,58	-1,32	19,93	20,51
	Série	9,46	72,63	2,2	109,8	13,1	0,96	-2,75	10,63	8,70
4	Simple	14,67	70,89	6,8	91,3	34,5	0,60	-1,30	22,96	20,17
	Série	14,56	72,12	2,2	63,0	12,3	0,83	-2,13	39,17	11,43

TAB. VI.2: Tests de comparaison entre les configurations en série et simple des micro-canaux, tests sans Span83 et Butan-1-ol.

On remarque qu'il est avantageux d'employer les deux micro-canaux en série ; celui-ci est montré par l'affinement du diamètre des gouttelettes (d_{10}) de 20 à 64 % par rapport au micro-canal "300-600" employé seul. **En présence de forts débits d'eau (Q_e), le montage en série est plus efficace que le micro-canal simple. Cette tendance est également constatée sur le diamètre minimum ou maximum des émulsions obtenues qui sont plus fines dans le cas du montage en série.**

Les figures VI.3, VI.9, VI.7 et VI.5 représentent la comparaison de deux distributions de gouttelettes issues respectivement du procédé simple (micro-canal "300-600" employé seul) et du procédé en série (le micro-canal "300-600" et le micro-canal "600-600" placés en série). La fonction de densité de probabilité (p.d.f.) est représentée en fonction des classes de gouttelettes adimensionnalisées (d^*). Les distributions de taille de gouttelettes adoptent des tendances qui obéissent effectivement à une loi de type log-normale. A l'aide de l'équation (VI.2), l'estimation de l'erreur est évaluée puis renseignée dans la colonne "$e_{p.d.f.}$" du tableau tableau VI.2.

On constate que la moitié des tests du montage en série offrent une erreur inférieure à celle du micro-canal simple (gamme 1 et gamme 3 dans tableau VI.2). Les résultats de la "$e_{p.d.f.}$" pour la gamme 2 et la gamme 4 avantagent le micro-canal "300 - 600" unique.

L'estimation de l'erreur est obtenue en utilisant l'équation (VI.5). Les résultats sont réunis sur dans la colonne "$e_{c.d.f.}$" du tableau tableau VI.2. Ces résultats montrent effectivement que les distributions de gouttelettes issues du système en série s'approchent davantage du modèle théorique log-normal avec une erreur "$e_{c.d.f.}$" systématiquement plus faible (de 8,70 à 15,55 %) par rapport au micro-canal "300 - 600" unique (12,18 à 20,17 %).

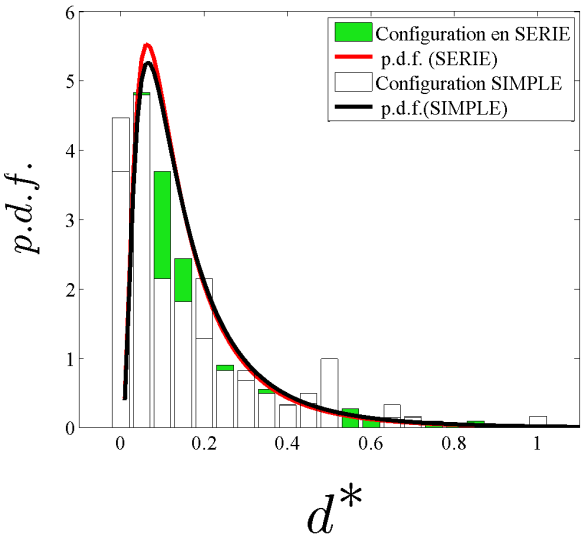


FIG. VI.3: Fonction p.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé Q_e = 4,24 mL/min et Q_h = 71,84 mL/min sans Span83.

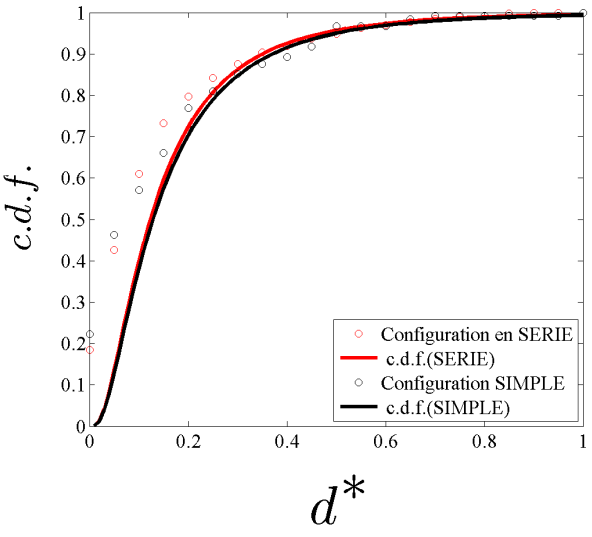


FIG. VI.4: Fonction c.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé Q_e = 4,24 mL/min et Q_h = 71,84 mL/min sans Span83.

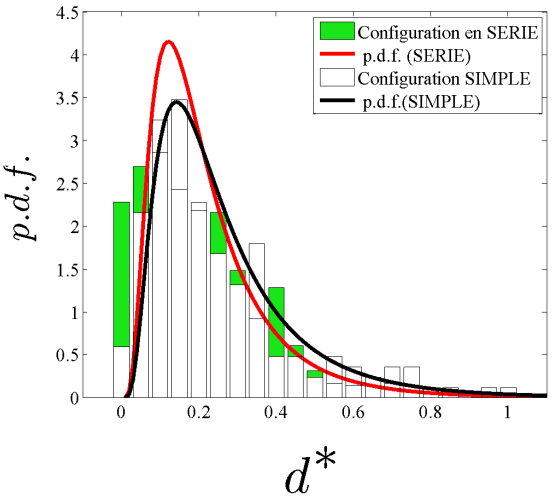


FIG. VI.5: Fonction p.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé Q_e = 6,82 mL/min et Q_h = 72,49 mL/min sans Span83.

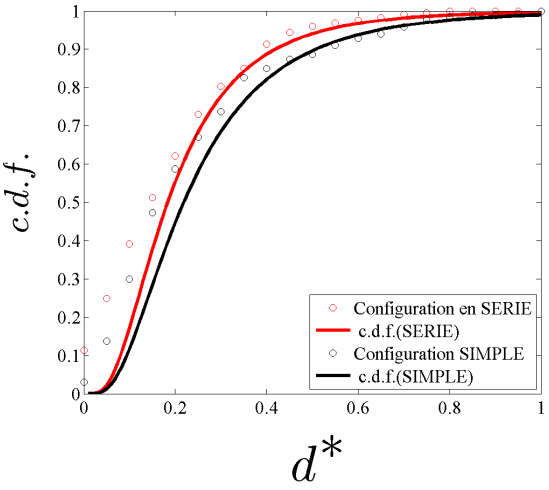


FIG. VI.6: Fonction c.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé Q_e = 6,82 mL/min et Q_h = 72,49 mL/min sans Span83.

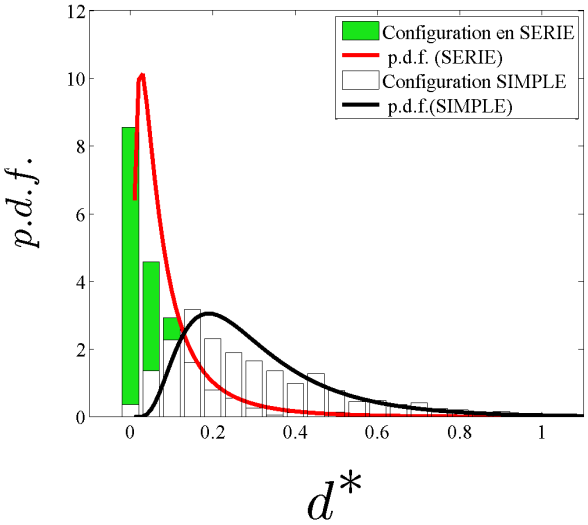


FIG. VI.7: Fonction p.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé Q_e = 9,46 mL/min et Q_h = 72,63 mL/min sans Span83.

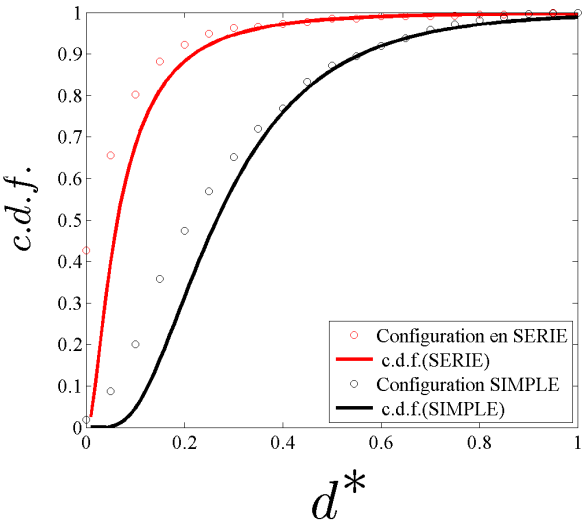


FIG. VI.8: Fonction c.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé Q_e = 9,46 mL/min et Q_h = 72,63 mL/min sans Span83.

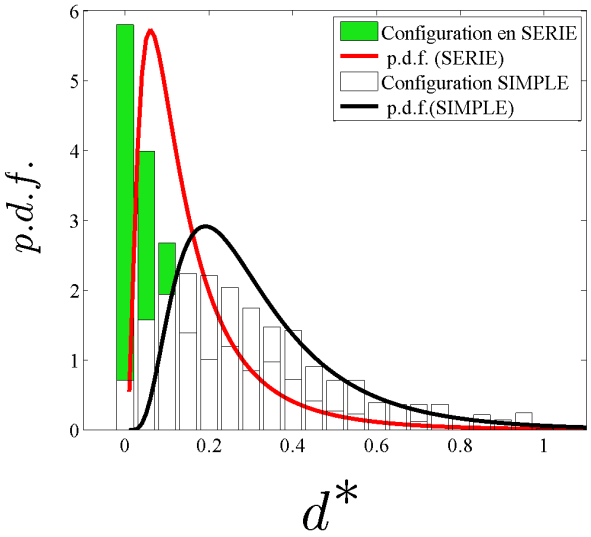


FIG. VI.9: Fonction p.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé Q_e = 14,56 mL/min et Q_h = 72,12 mL/min sans Span83.

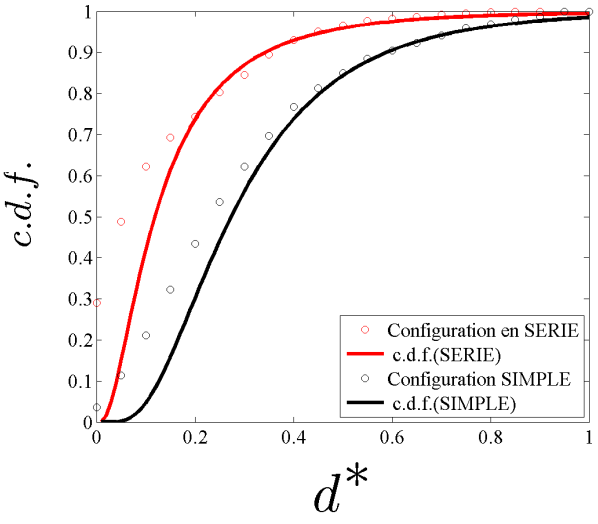


FIG. VI.10: Fonction c.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé Q_e = 14,56 mL/min et Q_h = 72,12 mL/min sans Span83.

b) Test d'émulsification avec 0,3 % de Span83

La figure VI.11 montre que les deux distributions de tailles de gouttelettes obéissent effectivement à une loi de type log-normale. L'erreur est estimée à **19,46 %** pour le procédé simple et **38,78 %** pour le procédé en série. On peut vérifier en comparant ces données avec celles de la série 2 obtenues sans Span83 (tableau VI.2) que l'utilisation du Span83 permet de réduire la taille des gouttelettes dans la configuration simple.

Gam.	Config.	Q_e	Q_h	Min(d_g)	Max(d_g)	d_{10}	$\sigma_{ln(d_g)}$	$\mu_{ln(d_g)}$	$\mathbf{e}_{p.d.f.}$	$\mathbf{e}_{c.d.f.}$
		$[\frac{mL}{min}]$	$[\frac{mL}{min}]$	[μm]	[μm]	[μm]			[%]	[%]
2	Simple	5,23	69,63	4,8	75,0	20,0	0,67	-1,76	19,50	15,00
	Série	6,20	73,79	2,2	79,9	17,1	0,79	-1,96	38,78	12,12

TAB. VI.3: Tests de comparaison entre les configurations simple et en série des micro-canaux, tests avec 0,3 % de Span83.

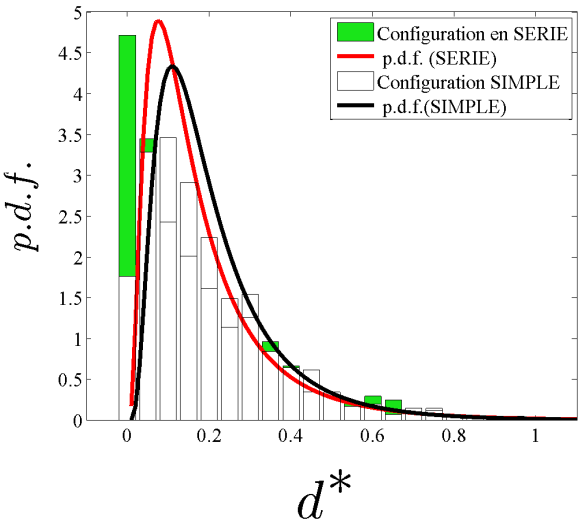


FIG. VI.11: Fonction p.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé, tests avec 0,3 % de Span83.

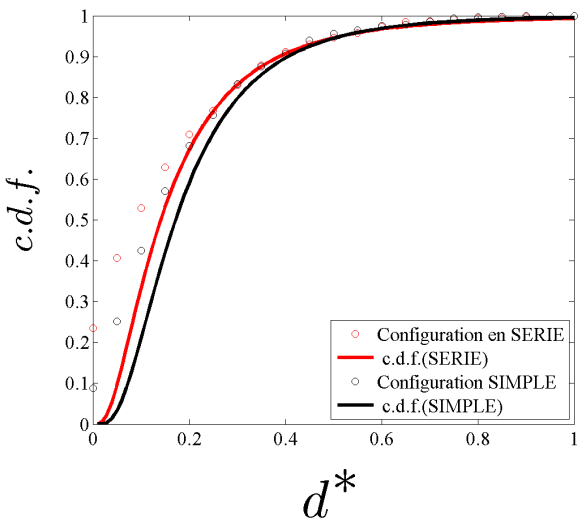


FIG. VI.12: Fonction c.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé, tests avec 0,3 % de Span83.

⚠

On conclut que l'ajout du système "600-600" en aval du micro-système "300-600" représente peu d'intérêt. Il n'existe pas de différence significative de taille moyenne de gouttelette dans les essais menés avec ou sans second micro-système si l'huile contient 0,3 % de Span83. On conclut que la tension inter-faciale ($\gamma_{e/h}$) qui a été abaissée de 58 % a eu peu d'impact sur le fractionnement comparativement à la vitesse débitante de l'eau. En effet, L'essentiel du travail de fractionnement a été effectué au niveau du premier micro-système "300-600".

c) Test d'émulsification avec 5 % de Butan-1-ol

On constate un débit de la phase continue atteignant 82 mL/min pour le test N°6, cela est dû à abaissement de la viscosité de l'huile de tournesol par l'ajout de 5 % de Butan-1-ol (voir §V.1.1). La figure VI.13 montre que les deux distributions de dimensions de gouttelettes obéissent effectivement à une loi de type log-normale. L'erreur est estimée à **30,22 %** pour le procédé simple et **26,64 %** pour le procédé en série.

On peut vérifier en comparant ces données à celles de la gamme 4 obtenues sans Span83 (tableau VI.2) que l'ajout de Butan-1-ol dans la phase continue permet de réduire la taille des gouttelettes dans la configuration simple.

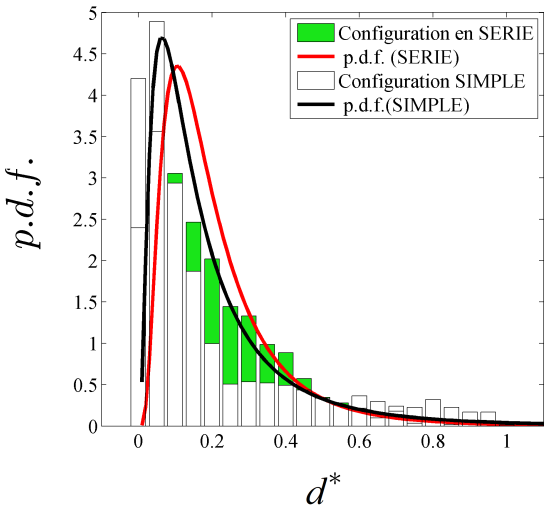


FIG. VI.13: Fonction p.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé, tests avec 5 % de Butanol.

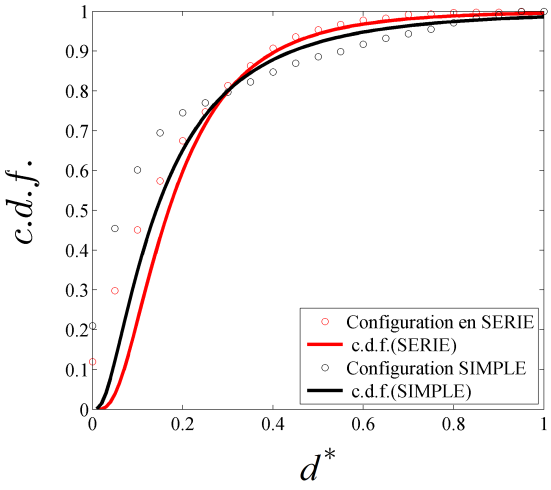


FIG. VI.14: Fonction c.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé, tests avec 5 % de Butanol.

Gam.	Config.	Q_e	Q_h	Min(d_g)	Max(d_g)	d_{10}	$\sigma_{ln(d_g)}$	$\mu_{ln(d_g)}$	$\mathbf{e}_{p.d.f.}$	$\mathbf{e}_{c.d.f.}$
		$[\frac{mL}{min}]$	$[\frac{mL}{min}]$	[μm]	[μm]	[μm]			[%]	[%]
4	Simple	13,25	73,99	3,4	99,8	23,7	0,89	-1,96	30,22	14,41
	Série	13,45	77,28	2,6	42,5	11,1	0,69	-1,78	26,64	14,59

TAB. VI.4: Tests de comparaison entre les configurations simple et en série des micro-canaux, tests avec 5 % Butan-1-ol.

⚠

On conclut que l'ajout du micro-système "600-600" en aval du micro-système "300-600" a permis d'affiner davantage la taille des gouttelettes lorsque la phase continue contient 5 % en masse de Butanol. Il est constaté un affinement sur le diamètre moyen "d_{10}" estimé à 50 %. Cela a pu être possible par l'abaissement combiné de la viscosité de 23 % et de la tension interfaciale ($\gamma_{e/h}$) de 54 %. Comme explicité plus haut, l'abaissement de la viscosité a permis une augmentation du débit de la phase continue (Q_h) et une intensification de l'écoulement de cisaillement. Ce dernier est combiné à un ajout d'un micro-système supplémentaire ("600-600") favorisant géométriquement l'apparition de singularités d'écoulement, comme des changements de sections de passage ou des changement de direction brusques, créant du fractionnement supplémentaire pour les grosses gouttelettes formées en amont dans le micro-système "300-600".

Les figures VI.15 et VI.16 permettent de réunir l'ensemble des diamètres mesurés (d_{10} et d_{32}) obtenus à l'issue des tests d'émulsification ci-avant. Chaque test sur les graphiques est

identifié par un numéro qui correspond au numéro du test, pour plus de détails se référer au tableau VI.1.

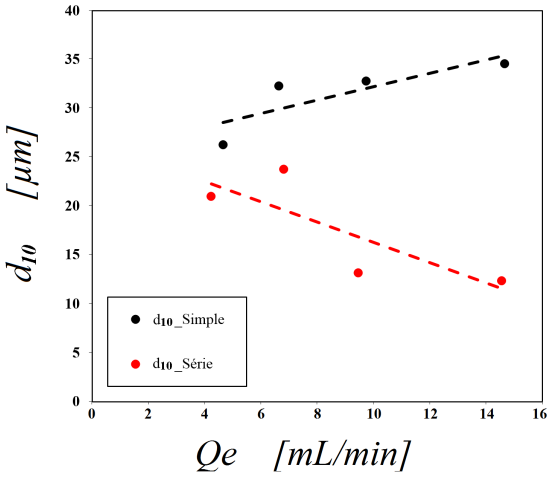


FIG. VI.15: Évolution de d_{10} en fonction du débit volumique d'eau, tests sans Span83.

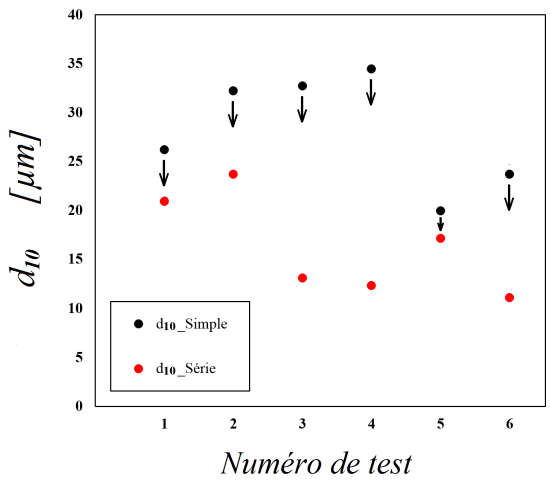


FIG. VI.16: Valeurs de d_{10} pour l'ensemble des tests affichés sur le tableau VI.1.

La figure VI.15 montre les tests effectués sans Span83. Il est clair que dans la gamme de débits étudiés, en configuration simple (points de couleur noire), l'augmentation du débit d'eau (phase dispersée) n'a pas de répercussion positive sur le diamètre de la dispersion si on utilise un seul système. En revanche, pour les systèmes montés en série (points de couleur rouge) le diamètre de la dispersion diminue clairement à mesure que le débit de l'eau augmente. La figure VI.16 est une confirmation de cette tendance qui montre que le système en série offre globalement une émulsion plus fine comparativement au micro-système simple.

VI.2.3 Dépenses énergétiques induites par l'affinement de la dispersion

Comme énoncé en introduction de cette thèse, une comparaison des dépenses d'énergie, sous forme de pertes de pression moyennes, des deux configurations de dispersion est réalisée. Les données des acquisitions de pression relatives aux essais d'émulsification sont réunies dans le tableau VI.5. La masse volumique de l'émulsion est obtenue en employant l'équation : $\rho_{emul} = \varphi_e\ \rho_e + (1 - \varphi_e)\ \rho_h$.

Les pressions sont mesurées à l'aide de deux capteurs de pression (voir le paragraphe § III.2.3) qui sont placés chacun en entrée d'admission de chaque phase. L'émulsion débouchant à la pression atmosphérique permet de conclure que les pressions enregistrées sont dissipées, suivant la configuration, à l'intérieur du micro-système ou bien des deux micro-systèmes en série. Cette dissipation comprend la création d'interface eau-huile mais aussi les pertes de pres-

sions régulières et singulières.

	Config.	(Q_h ; Q_e) [mL.min^{-1}]	φ_e [%]	(P_h; P_e) [bar]	(ρ_h; ρ_e) [kg/m^3]	ρ_{emul} [kg/m^3]	d_{10} [μm]	d_{32} [μm]
1	Simple	(71,6 ; 4,7)	6,10	(7,0 ; 3,3)	(865 ; 998)	873	26,2	51,1
	Série	(71,8 ; 4,2)	5,6	(11,9 ; 7,5)		872	20,9	51,67
2	Simple	(74,1 ; 6,6)	8,23	(7,0 ; 3,3)		876	32,2	54,9
	Série	(72,5 ; 6,8)	8,6	(12,6 ; 8,1)		876	23,7	39,4
3	Simple	(74,0 ; 9,7)	11,63	(6,9 ; 3,4)		880	32,7	48,5
	Série	(72,6 ; 9,5)	11,5	(12,2 ; 8,4)		880	13,1	50,7
4	Simple	(70,9 ; 14,7)	17,15	(7,3 ; 3,7)		888	34,5	53,2
	Série	(72,1 ; 14,6)	16,8	(11,3 ; 7,9)		887	12,3	28,3
5	Simple	(69,6 ; 5,2)	6,99	(11,9 ; 3,1)		874	20,0	33,7
	Série	(73,8 ; 6,2)	7,8	(12,8 ; 8,3)		875	17,1	38,7
6	Simple	(70,4 ; 13,3)	17,22	(5,3 ; 2,9)	(862 ; 998)	885	23,7	63,4
	Série	(77,3 ; 13,5)	14,8	(10,2 ; 7,4)		885	11,1	19,2

TAB. VI.5: Confrontation des dépenses énergétiques, sous forme de chute de pression.

Dans la perspective de bien mener cette comparaison, des grandeurs physiques, employées en génie des procédés, sont introduites comme la notion de création d'interface liquide-liquide (Sp = $\frac{6\,\varphi_e}{d_{32}}$) ou la notion de densité d'énergie par unité de masse d'émulsion ($\frac{P_h}{\rho emul}$). La figure VI.17 permet d'étudier la création d'interface par unité de volume d'émulsion en fonction de la densité d'énergie dépensée par unité d'émulsion créée. On constate que la configuration en série permet de générer davantage de surface par unité de volume d'émulsion. Cependant, la densité d'énergie par unité de masse d'émulsion créée est également importante pour la configuration en série comparativement au système simple "300-600".

Maintenant, si on s'intéresse au coût énergétique de cette génération de surface par rapport aux objectifs de cette thèse (finesse de la granulométrie), on peut représenter l'évolution du diamètre moyen des gouttelettes en fonction du rapport de la surface créée par unité de volume d'émulsion sur la densité d'énergie par unité de masse d'émulsion. Sur la base de ce critère, le système en série est de loin le meilleur générateur d'émulsion pour une quantité d'énergie et d'interface créée.

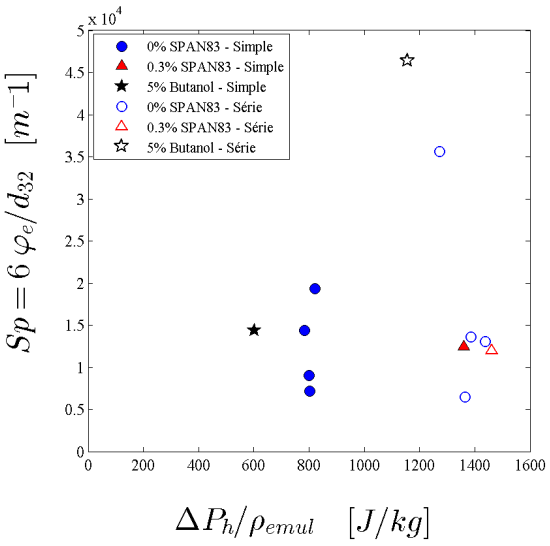


FIG. VI.17: Variation de la surface créée par unité de volume d'émulsion en fonction de la dépense d'énergie par kilogramme d'émulsion produite.

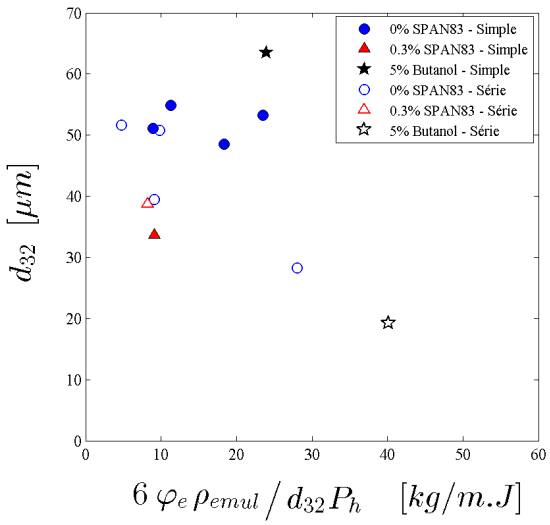


FIG. VI.18: Évolution du diamètre de sauter en fonction de la quantité d'émulsion produite par unité d'énergie dépensée et unité de longueur d'interface générée.

VI.2.4 Visualisations de l'écoulement diphasique au croisement

Les visualisations sont réalisées afin d'étudier l'écoulement responsable du fractionnement des gouttelettes d'eau dans le micro-système "600-600". Ce micro-système est le siège de l'impact des deux flux d'émulsion émis par le premier micro-système. Sur la figure VI.19 sont réunies une succession d'images représentant la zone du croisement du micro-canal "600-600". La fréquence d'acquisition est de 10 kHz pour une durée d'exposition de 1μs.

L'émulsion pénètre par les deux canaux horizontaux (à droite et à gauche du croisement) et l'impact se produit au croisement. L'évacuation de l'émulsion "fine" se fait par les deux canaux verticaux (en haut et en bas du croisement). Les flèches de couleur verte indiquent le sens d'écoulement des émulsions.

Sur ces images de la figure VI.19, on distingue la formation d'une zone claire entre l'émulsion, de couleur sombre, et les parois du canal. Cette zone représente la phase continue (huile) formant un film sur les parois du micro-canal. Cela est dû à un important cisaillement responsable de cet éloignement de la phase dispersée des parois des canaux.

La densité de présence de la phase dispersée est importante rendant les investigations optiques inefficaces. Pour une meilleure compréhension et analyse du mode de fractionnement,

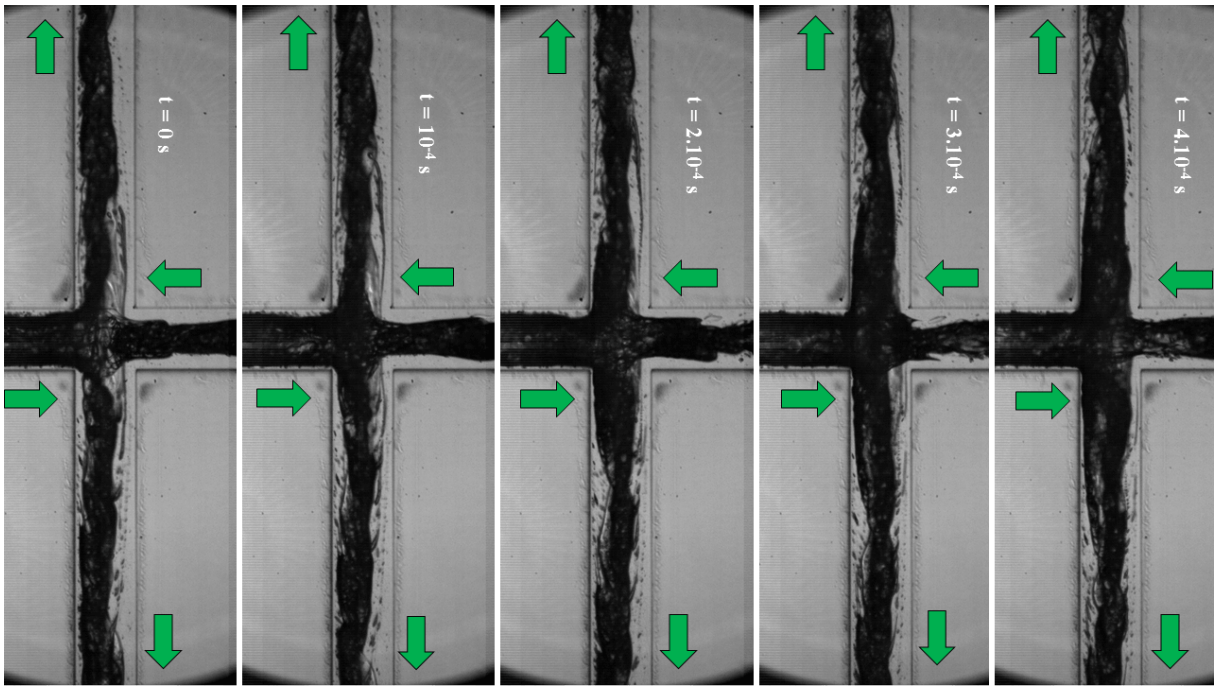


FIG. VI.19: Visualisation de l'écoulement dans le micro-système 600-600 placé dans un montage en série après le micro-système "300-600". Débit d'émulsion Q_{emul} = 79,31 mL/min.

nous avons analysé le passage d'une émulsion plus diluée c'est-à-dire contenant une densité d'eau dispersée plus faible. Ces images sont réunies sur la figure VI.20. La première image en partant de la gauche (t = 0 s) montre deux groupes de gouttelettes encerclées par un trait discontinu rouge. Ces deux paquets de gouttelettes entrainés chacun par l'écoulement empruntant un canal horizontal, entrent en collision au croisement à t = 100 μs c'est-à-dire à l'image suivante.

Les gouttelettes qui initialement possèdent une forme sphérique subissent un aplatissement résultant de l'impact des deux flux d'émulsion. Les gouttelettes qui entrent en collision coalescent pour former plusieurs filaments cylindriques localisés au centre du canal d'émulsion. La vitesse au centre du canal d'émulsion étant maximale, elle fait subir au filament un effort élongationnel (étirement longitudinal en direction des deux sorties). Les flèches de couleur blanche, servant de repères, permettent de déterminer cette vitesse d'élongation qui est de l'ordre de 4,2 m/s au centre du canal. A titre de comparaison, la vitesse moyenne dans les canaux d'émulsion est de 1,84 m/s. Cette vitesse est obtenue en additionnant le flux d'eau (Q_h = 72,49 mL/min) et d'huile de tournesol (Q_e = 6,82 mL/min). Le débit résultant est ensuite supposé réparti équitablement entre les deux canaux de sortie de section 600 × 600 μm^2.

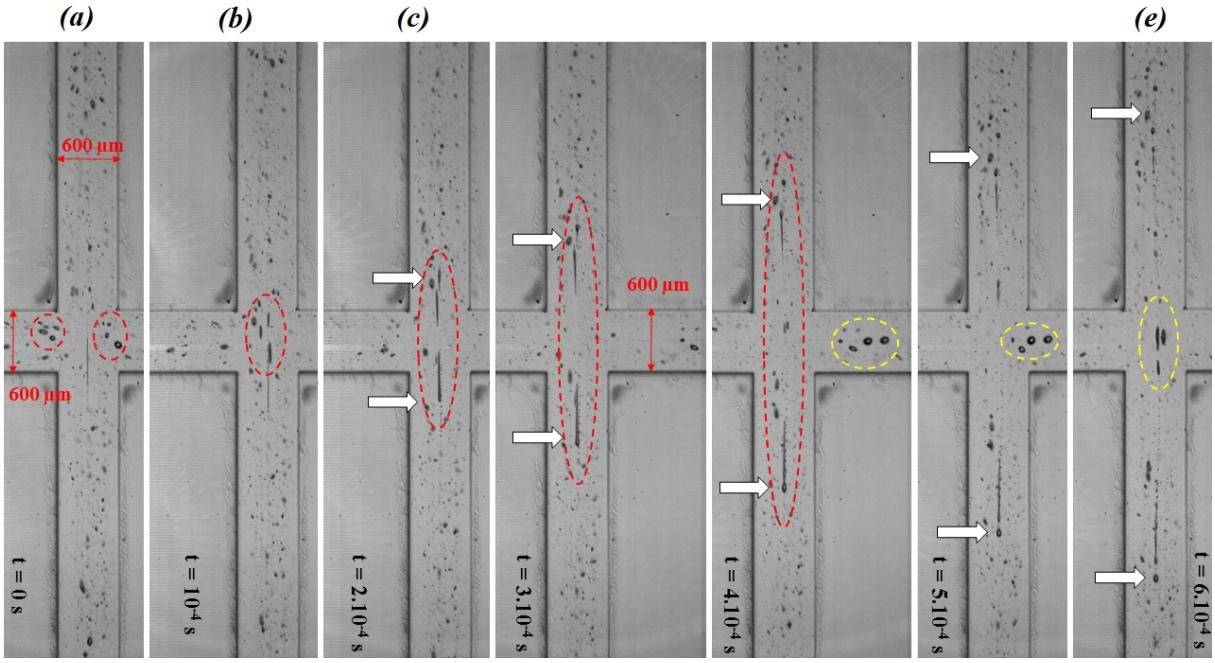


FIG. VI.20: Visualisations du micro-canal "600-600" pour un montage en série. Q_h = 72,49 mL/min et Q_e = 6,82 sans Span83.

En se référant à [De Gennes *et al.*, 2005], l'instabilité de Rayleigh-Plateau se produit lorsque le rapport de la longueur du filament sur son rayon atteint une valeur critique. Ce seuil est atteint lorsque le rayon du filament est inférieur à la longueur d'onde de l'instabilité d'interface huile-eau. Cette dernière causera le fractionnement du filament (voir la figure VI.21-(d)). Vers 1870, Plateau met des gouttes d'huile dans de l'eau. Avec un effort d'agitation, il se mit à déformer ces gouttes d'huile pour former des filaments cylindriques. A l'issue de cette expérience, il a confirmé que le cylindre devient instable pour la condition $\lambda > 2\pi R$. Avec "λ" la longueur d'onde de l'instabilité d'interface et R le rayon du filament.

La figure VI.21 permet de détailler les mécanismes de fractionnement lors de la collision de deux gouttes. Les modélisations en 3D qui y sont représentées considèrent le cas idéal d'un impact frontal entre deux gouttelettes. Ajouté à cela, on considère une répartition équitable de l'émulsion dans les deux entrées du micro-canal "600-600", permettant la supposition d'un écoulement symétrique :

1. Impact frontal au croisement des gouttelettes mères (voir la figure VI.21-(a) correspondant à l'image VI.20-(a)).

2. Coalescence des deux gouttelettes mères formant un filament cylindrique (voir la figure

VI.21-(b) correspondant à l'image VI.20-(b)).

3. Application sur le filament cylindrique d'un écoulement de compression dans le sens vertical et un écoulement élongationnel partant du croisement et en dirigeant vers les deux sorties horizontalement (voir la figure VI.21-(c) correspondant à l'image VI.20-(a)). En se référant à [Windhab *et al.*, 2005], cet écoulement est désigné par le terme "écoulement d'élongation plane", faisant partie de la famille des écoulements bi-axiaux.

4. Les instabilités de Plateau-Rayleigh interviennent lorsque le rayon critique du filament est atteint. Ce seuil représente un rayon du filament inférieur à la longueur d'onde de l'instabilité à l'interface eau-huile. Quand ce seuil est atteint, les instabilités se chargent du travail de fractionnement du filament (voir la figure VI.21-(d)).

5. Les deux gouttelettes mères se fractionnent en plusieurs petites gouttelettes filles (voir la figure VI.21-(e) correspondant à l'image VI.20-(e)).

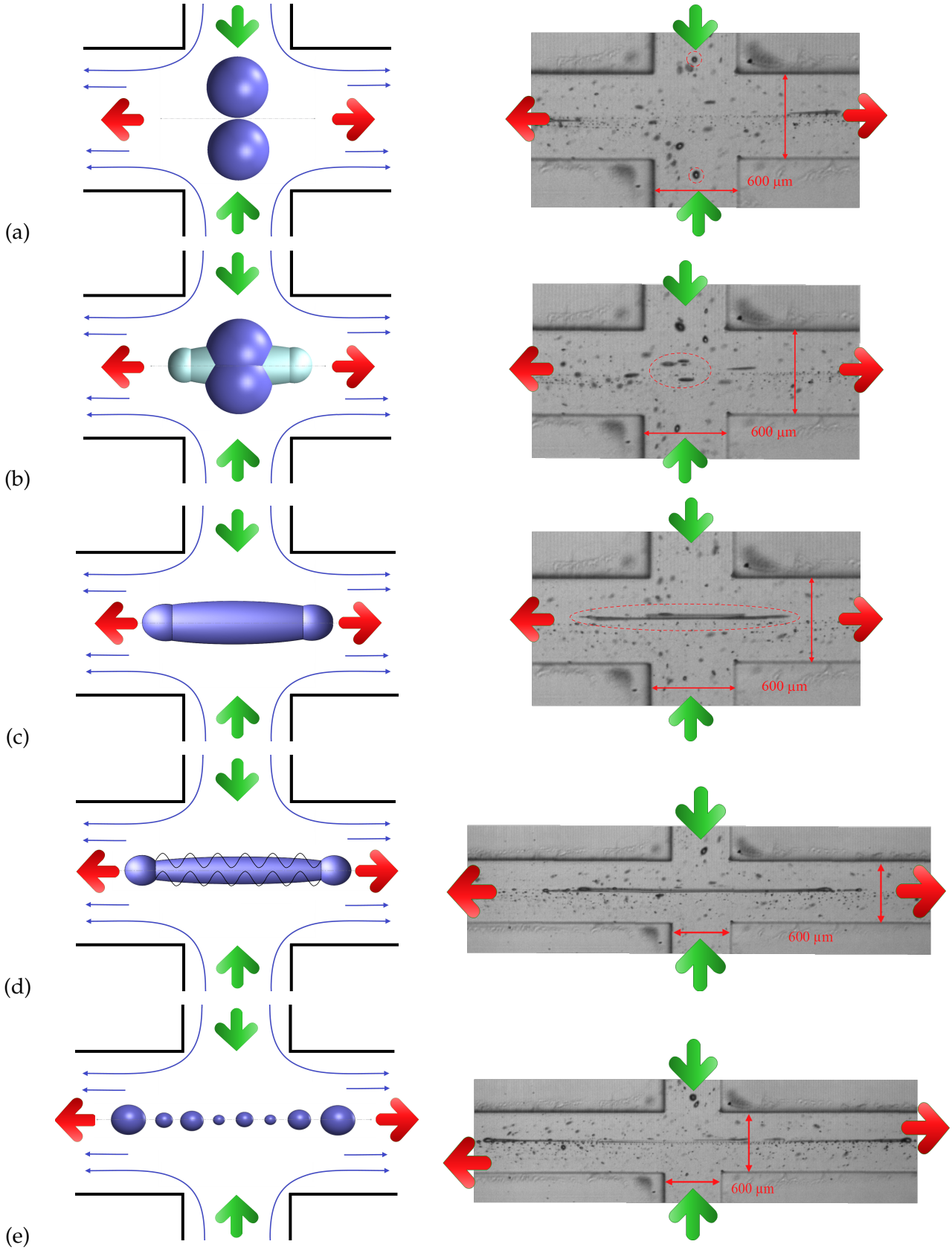


FIG. VI.21: Description des cinq étapes principales du mécanisme de fractionnement liquide-liquide dans le micro-canal "600-600".

VI.3 Conclusion

L'émulsion produite dans le canal "300-600" est issue d'un écoulement à jets impactants dont les caractéristiques ont été selectionnées sur la base de considérations physiques (chapitre IV). L'émulsion est ensuite admise dans le micro-système "600-600" pour y subir un fractionnement secondaire. Le séquençage du fractionnement liquide-liquide donne lieu à plusieurs mécanismes : le laminage d'un filet de fluide en une pré-émulsion dans le premier micro-système et le fractionnement des gouttelettes de la pré-émulsion dans le second micro-système.

L'emploi de la fonction cumulative de la distribution de gouttelettes (c.d.f.), montre que les émulsions obtenues avec la configuration en série présentent des distributions granulométrique qui s'approchent de distributions de type log-normal. La dispersion liquide-liquide à travers les deux micro-systèmes en série a permis un affinement de 40 % concernant le diamètre moyen des gouttelettes "d_{10}". Évidemment, un tel affinement de la granulométrie suscite une dépense énergétique supplémentaire à céder sous formes de chutes de pression liées à l'augmentation de la longueur totale du micro-canal traversé. Cependant, il convient de confirmer que le montage en série présente la meilleure quantité d'émulsion produite rapportée à une unité d'énergie consommée et à une unité d'interface eau-huile générée.

Maintenant, si on s'intéresse au coût énergétique de cette génération de surface, on peut représenter l'évolution du diamètre moyen des gouttelettes en fonction du rapport de surface créée par unité de volume d'émulsion sur la densité d'énergie par unité de masse d'émulsion, autrement dit c'est la quantité d'émulsion produite rapportée à l'unité d'énergie consommée et l'unité de longueur d'interface eau-huile. Avec cette notion, le système en série est de loin le meilleur générateur d'émulsion pour une quantité d'énergie et d'interface créée.

En ce qui concerne le fractionnement des gouttelettes dans le second micro-système, la visualisation à haute fréquence a permis de décrire le processus intime en cinq étapes, à savoir : impact frontal des gouttes mères, coalescence des deux gouttelettes mères et leur laminage formant un filament cylindrique, étirement du filament par un écoulement d'élongation plane, apparition des instabilités de Plateau-Rayleigh à l'interface eau-huile, fractionnement des gouttelettes mères.

Conclusion générale

Dans un contexte énergétique marqué par une raréfaction des sources primaires et une altération de l'environnement planétaire, les volontés se tournent vers le développement de solutions éco-responsables. Dans cette perspective, cette étude s'est intéressée au développement d'un procédé de fractionnement qui pourrait être employé pour une application d'émulsification de biocarburants. Des auteurs [Kerihuel *et al.*, 2005, Kumar *et al.*, 2006, M.S. Kumar, 2009, Tarlet *et al.*, 2010] ont prouvé qu'il est possible, pour l'alimentation de moteurs ou de chaudières, d'intégrer des produits habituellement exclus du champs d'application des carburants, à savoir : les huiles de récupération, les graisses animales ou les co-produits issus de la distillation pétrolière comme le fuel lourd. La présence d'eau, sous forme de gouttes dispersées dans une phase lipidique, joue en outre un rôle d'optimisation de la combustion. On parle d'un phénomène thermo-physique appelé micro-explosion qui réduit les émissions des oxydes d'azote (NOx) et des imbrulés (suie) [M.S. Kumar, 2009, Tomoaki *et al.*, 2012].

Actuellement, la micro-fluidique est un domaine de recherche actif depuis deux décennies, montrant en particulier un intérêt pour le développement de procédés d'émulsification. L'état de l'art bibliographique a permis de confirmer une abondance d'études des procédés d'émulsification essentiellement appliqués vers les mélanges de type huile dans eau (h/e). Ce type de dispersion est considéré comme étant moins énergivore en raison de l'emploi d'une phase aqueuse en guise de phase continue. Incontestablement, une phase continue moins visqueuse génère une dissipation visqueuse moins importante. Ajouté à cela, la gamme des nombres capillaires appliqués à travers les systèmes recensés sont faibles (Ca <1), conduisant à la production de faibles flux d'émulsion.

Au regard de l'intérêt suscité par ces micro-mélangeurs, nous avons développé un procédé faisant appel à la technologie des micro-canaux en vue d'une application d'émulsification de type eau dans huile. L'étude de l'émulsification développée dans ce travail est basée sur une approche de type "maquette froide". Une huile de tournesol et une eau du réseau urbain sont

utilisées en guise respectivement de phase continue et de phase dispersée. La viscosité à température ambiante de l'huile utilisée est de l'ordre de grandeur de celle de phases lipidiques issues de déchets (graisses animales, fuels lourds, etc.) à une température correspondant au préchauffage des fluides admis dans des moteurs par exemple (températures de l'ordre de 60 °C ou plus). Les débits d'émulsion obtenus sont compris entre 60 et 100 mL/min en mode de dispersion continue. En particulier, les nombres capillaires appliqués à travers ce système sont 10 à 1000 fois supérieurs à ceux investigués dans la littérature scientifique. Ces écoulements sont confinés à l'intérieur de micro-canaux usinés dans des plaques en PMMA (Plexiglas) et formant une croix, dont les diamètres hydrauliques varient entre 200 et 800 μm. Le choix du PMMA est conditionné par une nécessité d'investigation optique de l'écoulement. En outre, la mouillabilité de ce matériau par l'eau est médiocre. Au-delà des particularités mentionnées ci-dessus, on a mis en lumière un écoulement diphasique original avec cette technique de dispersion liquide-liquide. Cet écoulement caractéristique est le résultat de l'impact frontal de deux jets (huile de tournesol et eau). Cet écoulement à jets en impact se distingue également :

- par des vitesses débitantes appliquées importantes,
- par une configuration des canaux gravés en forme de croix (deux admissions et deux sorties)
- L'admission de la phase dispersée (eau), possédant une section inférieure à celle de l'huile, est placé en hauteur induisant un effet de courbure aux lignes de courant de l'eau.

Le travail est initié par l'étude du micro-canal à sections uniformes "600-600" qui représente une version plus aboutie et mieux adaptée pour la dispersion eau dans huile que celle précédemment testée dans le travail de [Montillet *et al.*, 2013]. Les tests ont révélé qu'il s'avère inadapté à la production de biodiesel émulsionné selon le cahier des charges énoncé. En effet, la fraction volumique d'eau dispersée "ϕ_e" à mettre en œuvre et la diamètre moyen des gouttelettes d'eau "d_{av}" obtenus sont trop importants. Afin de remédier à ces insuffisances, l'effet d'un ratio de section d'entrée d'eau sur la section d'entrée d'huile inférieur à l'unité est testé. La section du canal d'admission de la phase dispersée est réduite à 300 × 300 μm^2 puis à 200 × 200 μm^2 obtenant des micro-canaux désignés par "300-600" et "200-600". Par ailleurs, les sections des deux canaux d'émulsion et du canal d'admission d'huile sont élargies à 800 × 800 μm^2.

Une étude comparative de l'ensemble des micro-canaux est alors réalisée et ce dans des conditions expérimentales contrôlées. Cette comparaison est établie sur la base de critères issus de la physique du procédé : tailles de gouttelettes dispersées, nombres adimensionnels (Ca et Oh), la force de cohésion ou de formation de l'émulsion F_γ ou l'énergie cinétique des flux

d'alimentation. On conclut qu'un meilleur fractionnement est obtenu pour une section réduite du canal de phase dispersée (eau). D'ailleurs, le diamètre moyen d_{10} est réduit de quasiment 50 %, atteignant 10 μm pour une fraction volumique d'eau de l'ordre de 10 à 20 %. A l'issue de cette comparaison, il a été montré que le micro-canal "300-600" est le plus apte à maximiser l'aire de l'interface eau-huile pour une gamme de volume d'eau dispersé similaire.

Dans cette démarche d'optimisation du procédé, le micro-système "300-600" a fait l'objet d'une étude plus aboutie concernant l'influence des conditions intrinsèques (viscosité, tension inter-faciale et masse volumique) et contextuelles (vitesse débitante). Une analyse dimensionnelle est appliquée sur l'ensemble des résultats obtenus qui a permis de mettre en forme un modèle exprimant le diamètre moyen "d_{10}" en fonction des différents paramètres. Un second modèle basé sur la conservation de l'énergie mécanique dans le canal a permis également de fournir une prédiction du diamètre obtenu à travers une relation linéaire du nombre d'Ohnesorge "Oh" et un nombre capillaire équivalent "Ca^*" adapté au croisement.

Par ailleurs, la technique de visualisation à haute fréquence a permis de mettre en évidence une structure hydrodynamique sous la forme d'un enroulement. Cette structure constituée par la phase dispersée (eau) présente sous forme de gouttes et de filaments et entourée par la phase continue, se prolonge par un mouvement combiné de rotation et de translation (advection) vers les deux sorties. Sachant que le débit de la phase continue est maintenu fixe, la position de cette structure hydrodynamique dans le canal de l'émulsion est gouvernée par le débit de la phase dispersée.

La détermination de la longueur du canal de sortie où s'observe l'effet de l'impact des deux fluides pour le micro-canal "300-600" est cruciale. En effet cette longueur est à prendre en considération pour le dimensionnement raisonné d'un micro-système de ce type. Pour ce faire, les limites d'investigation de la technique de visualisation à haute fréquence sont remédiées par la collecte locale de lumière polarisée du laser. Un algorithme de post-traitement des signaux lumineux collectés est appliqué. Ce dernier a permis de s'affranchir des périodes de signaux présentant des anomalies expérimentales. Cette technique a permis d'opérer une cartographie de quatre cas types. La zone dite active a été investiguée avec un maillage carré de 150 μm de côté. Cette zone est estimée à 3,5 Dh (2 mm) de part et d'autre du croisement.

Une confrontation qualitative des résultats issus de ces deux techniques (caméra rapide et

collecte de la lumière laser polarisée) sur ces cas types est réalisée. Les résultats permettent de confirmer, pour les deux techniques, une concordance de l'espace occupé par la phase dispersée dans le canal d'émulsification.

Enfin, cet écoulement combiné (rotation-advection) est exploité dans le micro-canal "600-600" sur une émulsion déjà formée en amont dans le micro-canal "300-600". La mise en série des ces deux micro-systèmes a mis en évidence une baisse significative du diamètre moyen. Elle a aussi permis l'étude du mécanisme de fractionnement liquide-liquide qui est décrit en cinq étapes idéales : impact frontal des gouttes mères, coalescence des deux gouttelettes mères formant un filament cylindrique, étirement du filament par un écoulement d'élongation plane, apparition des instabilités de Plateau-Rayleigh à l'interface eau-huile, fractionnement des gouttelettes mères.

Le tableau VI.6 ci-dessous compile les ordres de grandeurs des nombres adimensionnels et le tableau VI.7 compile les variables physiques auxquelles cette étude a fait appel.

Nombre adimensionnel	**Ordre de grandeur**
Nombre de Reynolds ($Re = \frac{\rho_d \, v_m \, d_g}{\mu_c}$)	0,2 - 2,3
Nombre de Reynolds d'admission d'huile ($\mathrm{Re}_h = \frac{\rho_h \, v_h \, Dh_h}{\mu_h}$)	27 - 42
Nombre de Reynolds d'admission d'eau ($\mathrm{Re}_e = \frac{\rho_e \, v_e \, Dh_e}{\mu_e}$)	137 - 1809
Nombre Capillaire ($Ca = \frac{\mu_c \, v_h}{\gamma_{e/h}}$)	3 - 14
Nombre Capillaire ($Ca = \frac{\mu_c \, v_m}{\gamma_{e/h}}$)	3 - 8
Nombre d'Ohensorge (Oh)	1 - 11

TAB. VI.6: Données d'émulsification (ordre de grandeur des principaux nombres sans dimension).

Variable	Ordre de grandeur
Débit volumique d'eau (Q_e)	3 - 20 [mL/min]
Débit volumique d'huile (Q_h)	55 - 92 [mL/min]
Vitesse moyenne dans le canal d'eau (v_e)	0,2 - 8,3 [m/s]
Vitesse moyenne dans le canal d'huile (v_h)	1,5 - 4,6 [m/s]
Fraction volumique de l'eau (φ_e)	5,9 - 20,4 [%]
Débit d'émulsion total, i.e. pour les deux canaux de sortie (Q_{emul})	64 - 105 [mL/min]
Vitesse moyenne de l'émulsion dans un seul canal (v_m)	1,5 - 2,5 [m/s]
Temps de séjour moyen dans un seul canal d'émulsion	8,0 - 13,5 [μs]
Pression relative de l'eau (P_e)	2 - 7 [bar]
Pression relative de l'huile (P_h)	2,5 - 12 [bar]
Diamètre moyen de gouttelettes (d_{10})	9 - 38 [μm]
Gamme de diamètres de gouttelettes (max(d_g) - min(d_g))	3 - 120 [μm]
Tension inter-faciale ($\gamma_{e/h}$)	3,8 - 27,6 [mN/m]
Section de passage de l'eau (S_e)	200^2, 300^2 et 600^2 [μm^2]
Section de passage de l'huile et de l'émulsion (S_h)	300^2, 600^2 et 800^2 [μm^2]

TAB. VI.7: Données d'émulsification et ordre de grandeur.

En guise de perspectives, on envisage à court terme, d'affiner davantage le diamètre moyen des gouttelettes pour les besoins de la micro-explosion, en employant un seul micro-canal. Cela peut être conduit comme une étude de sensibilité des paramètres influençant le procédé permettant d'optimiser le micro-canal sur le plan géométrique. A moyen terme, il serait intéressant d'étudier cet écoulement à l'aide de modèles numériques déjà existants afin de permettre d'accélérer le développement du procédé par jets en impact confinés. Son perfectionnement nécessite l'optimisation des dimensions du micro-canal en croix afin d'obtenir une granulométrie de dispersion qui soit encore plus en adéquation avec les exigences du principe de micro-explosion et d'autre part une rationalisation plus accrue des dépenses énergétiques du procédé. Enfin, des essais de combustion des émulsions obtenues par ce procédé sont nécessaires et permettraient d'apporter des informations majeures sur la combustion.

Bibliographie

[Aarts, 2005] AARTS, D. G. A. L. (2005). Capillary length in a fluid-fluid demixed colloid-polymer mixture. *The journal of physical chemistry. B*, 109(15):7407–11.

[Abdou Rachid Thiam, 2010] ABDOU RACHID THIAM (2010). *Émulsions adhésives et non adhésives : Stabilité et propiétés des interfaces étudiées par la microfluidique.* Thèse de doctorat.

[Abismaïl *et al.*, 1999] ABISMAÏL, B., CANSELIER, J. P., WILHELM, A., DELMAS, H. et GOURDON, C. (1999). Emulsification by ultrasound : drop size distribution and stability. *Ultrasonics sonochemistry*, 6:75–83.

[Ait Mouheb, 2010] AIT MOUHEB, N. (2010). *Caractérisations expérimentale et numérique de l'écoulement et du transfert de matière dans des micro-mélangeurs*. Thèse de doctorat, Nantes.

[Ait Mouheb *et al.*, 2011] AIT MOUHEB, N., MONTILLET, A., SOLLIEC, C., HAVLICA, J., LEGENTILHOMME, P., COMITI, J. et TIHON, J. (2011). Flow characterization in T-shaped and cross-shaped micromixers. *Microfluidics and Nanofluidics*, 10(6):1185–1197.

[Akay et Tong, 2000] AKAY, G. et TONG, L. (2000). Intensive Structuring : Intensive Processing of Microstructured Materials by Flow Induced Phase Inversion. *Chemical Engineering and Technology*, 23:285 ?–288.

[Ali M.A Attia, 2014] ALI M.A ATTIA, A. K. (2014). Influence of the structure of water-in-fuel emulsion on diesel engine performance. *Fuel*, 116:703–708.

[Anna *et al.*, 2003] ANNA, S. L., BONTOUX, N. et STONE, H. A. (2003). Formation of dispersions using flow focusing in microchannels. *Applied Physics Letters*, 82(3):364.

[Barbier *et al.*, 2006] BARBIER, V., TATOULIAN, M., LI, H., AREFI-KHONSARI, F., , Ajdari, A. et TABELING, P. (2006). Stable modification of PDMS surface properties by plasma polymerization : application to the formation of double emulsions in microfluidic systems. *Langmuir*, 22:5230–5232.

[Barnes, 1994] BARNES, H. A. (1994). Rheology of emulsions : a review. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, 91:89–95.

[Baroud *et al.*, 2010] BAROUD, C. N., GALLAIRE, F. et DANGLA, R. (2010). Dynamics of microfluidic droplets. *Lab on a chip*, 10(16):2032–2045.

[Belkadi *et al.*, 2012] BELKADI, A., TARLET, D., MONTILLET, A., BELLETTRE, J. et MASSOLI, . (2012). High-speed w/o emulsification within impinging and cross-flowing mini-channels. *In Proceedings of the 3rd European Conference on Microfluidics*, Heidelberg, Germany.

[Boutier, 2012] BOUTIER, A. (2012). *Métrologie laser pour la mécanique des fluides : Granulométrie et techniques spectroscopiques*. Hermès science publications-Lavoisier.

[Boyd *et al.*, 1972] BOYD, J., PARKINSON, C. et SHERMAN, P. (1972). Factors affecting emulsion stability, and the HLB concept. *Journal of Colloid and Interface Science*, 41(2):359–370.

[Brochette, 1999] BROCHETTE, P. (1999). Émulsification : Élaboration et étude des émulsions. *Techniques de l'Ingénieur, traité Génie des procédés*, J2150:1–18.

[Calabria et Massoli, 2007] CALABRIA, R. et MASSOLI, P. (2007). Generalised scattering imaging laser technique for 2-D characterization of non-isothermal sprays. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 31:445–451.

[Calabria *et al.*, 2009] CALABRIA, R., MASSOLI, P., MATEO, M.-P., CTVRTNICKOVA, T. et YANEZ, A. (2009). *Laser diagnostic in Combustion*. ProcessEng Engineering GmbH.

[Cancelier et Poux, 2004] CANCELIER, J.-P. et POUX, M. (2004). Procédés d'émulsification Mécanismes de formation des émulsions. *Techniques de l'ingénieur*, pages 1–12.

[C.F. Bohren, 2004] C.F. BOHREN, D. H. (2004). *Absorption and Scattering of light by small particles*. Wiley-VCH.

[Ciblac, 2010] CIBLAC, T. (2010). Modélisations Analyse dimensionnelle et lois de similitude.

[Colin et Baldas, 2004] COLIN, S. et BALDAS, L. (2004). *Microfluidique*. Hermès science publications-Lavoisier.

[Colonna et Della Valle, 2006] COLONNA, P. et DELLA VALLE, G. (2006). *Mise en oeuvre des matières agroalimentaires 1* , volume 1. Lavoisier.

[Cramer *et al.*, 2004] CRAMER, C., FISCHER, P. et WINDHAB, E. J. (2004). Drop formation in a co-flowing ambient fluid. *Chemical Engineering Science*, 59:3045–3058.

[Davies, 1957] DAVIES, J. (1957). A quantitative kinetic theory of emulsion type. *Proc. Int. Congr. Surf. Act. 2nd*, 1:426–428.

[De Gennes *et al.*, 2005] DE GENNES, P.-G., BROCHARD-WYART, F. et QUÉRÉ, D. (2005). *Gouttes, bulles, perles et ondes*. Belin.

[De Menech *et al.*, 2008] DE MENECH, M., P., G., F., J. et STONE, H. A. (2008). Transition from squeezing to dripping in a microfluidic T-shaped junction. *Journal of Fluid Mechanics*, 595: 141–161.

[D.F.Evans, 1999] D.F.EVANS, H. W. (1999). *Colloidal domain : where physics, chemistry and biology meet (2nd Ed.)*. Wiley-VCH.

[Dreyfus *et al.*, 2003] DREYFUS, R., TABELING, P. et WILLAIME, H. (2003). Ordered and Disordered Patterns in Two-Phase Flows in Microchannels. *Physical Review Letters*, 90(14):1–4.

[F. Shahrokhi, 1968] F. SHAHROKHI, P. W. (1968). *Mie-scattering function*. NASA contractor report.

[Farah *et al.*, 2005] FARAH, M., OLIVEIRA, R., CALDAS, J. et RAJAGOPAL, K. (2005). Viscosity of water-in-oil emulsions : Variation with temperature and water volume fraction. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 48:169–184.

[Frédéric, 2009] FRÉDÉRIC, S. (2009). Les biocarburants de troisième génération. *Techniques de l'ingénieur*, 6323.

[Galindo Alvarez, 2008] GALINDO ALVAREZ, J.-M. (2008). *Etude de l'inversion de phase catastrophique lors de l'émulsification de produits visqueux*. Thèse de doctorat, Nancy.

[Garstecki *et al.*, 2006] GARSTECKI, P., FUERSTMAN, M. J., STONE, H. A. et WHITESIDES, G. M. (2006). Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T-junction-scaling and mechanism of break-up. *Lab on a chip*, 6(3):437–46.

[Garstecki *et al.*, 2005] GARSTECKI, P., STONE, H. A. et WHITESIDES, G. M. (2005). Mechanism for Flow-Rate Controlled Breakup in Confined Geometries : A Route to Monodisperse Emulsions. *Physical Review Letters*, 94(16):1–4.

[Ghodssi et Lin, 2011] GHODSSI, R. et LIN, P. (2011). *MEMS Materials and Processes Handbook*. Springer.

[Gouesbet, 1998] GOUESBET, G. (1998). Diffusion des faisceaux laser par des particules. *Techniques de l'ingénieur*, 33(0).

[Grace, 1982] GRACE, P. (1982). Dispersion phenomena in high viscosity immiscible fluid systems and application of static mixers as dispersion devices in such systems. *Chemical Engineering Communications*, 14:225–277.

[Guilbot, 2006] GUILBOT, J. (2006). Importance des corps gras dans le domaine des tensioactifs. *Oléagineux, Corps Gras, Lipides*, 13(2).

[Guillot *et al.*, 2008] GUILLOT, P., COLIN, A. et AJDARI, A. (2008). Stability of a jet in confined pressure-driven biphasic flows at low Reynolds number in various geometries. *Physical Review E*, 78.

[Guillot *et al.*, 2007] GUILLOT, P., COLIN, A., UTADA, A. S. et AJDARI, A. (2007). Stability of a Jet in Confined Pressure-Driven Biphasic Flows at Low Reynolds Numbers. *Physical Review Letters*, 99(10):1–4.

[Gupta *et al.*, 2009] GUPTA, A., SOHEL MURSHED, S. M. et KUMAR, R. (2009). Droplet formation and stability of flows in a microfluidic T-junction. *Applied Physics Letters*, 94(16):164107.

[H.Ã. Schubert, 2004] H.Ã. SCHUBERT, R. E. (2004). Product and formulation engineering of emulsions. *Chemical Engineering*, 82:1137–1143.

[Habchi *et al.*, 2009] HABCHI, C., LEMENAND, T., DELLA VALLE, D. et PEERHOSSAINI, H. (2009). Liquid / liquid dispersion in a chaotic advection flow. *International Journal of Multiphase Flow*, 35:485–497.

[H.J. Butt, 2003] H.J. BUTT, K. Graf, M. K. (2003). *Physics and Chemistry of Interfaces*. Wiley-VCH Verlag GmbH and Co. KGaA.

[J. Pellicer, 2000] J. PELLICER, V. Garcia-Morales, M. J. H. (2000). On the demonstration of the Young-Laplace equation in introductory physics courses. *Physics Education*, 35(2):126–129.

[Jacques *et al.*, 1977] JACQUES, M., JORDAN, J., WILLIAMS, A. et HADLEY-COATES, L. (1977). The combustion of water-in-oil emulsions and the influence of asphaltene content. *Proceedings of the Combustion Institute*, 16(1):307–319.

[J.M.H. Janssen, 1993] J.M.H. JANSSEN, H. M. (1993). Droplet breakup mechanisms : Stepwise transient dispersion equilibrium versus. *Journal of Rheology*, 37(4):597–608.

[Jurado *et al.*, 2007] JURADO, E., BRAVO, V., CAMACHO, F., VICARIA, J. et FERNANDEZ-ARTEAGA, A. (2007). Estimation of the distribution of droplet size , interfacial area and volume in emulsions. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, 295:91–98.

[Kasarova *et al.*, 2007] KASAROVA, S., GEORGIEVA, S., DIMITROV, I. et DECHEV, N. (2007). Analysis of the dispersion of optical plastic materials. *Optical Materials*, 29(11):1481–1490.

[Kerihuel *et al.*, 2005] KERIHUEL, A., KUMAR, M., BELLETTRE, J. et TAZEROUT, M. (2005). Use of animal fats as CI engine fuel by making stable emulsions with water and methanol. *Fuel*, 84:1713–1716.

[Kerihuel *et al.*, 2006] KERIHUEL, A., KUMAR, M., BELLETTRE, J. et TAZEROUT, M. (2006). Ethanol animal fat emulsions as a diesel engine fuel ? Part 1 : Formulations and influential parameters. *Fuel*, 85(17-18):2640–2645.

[Kiljanski, 2004] KILJANSKI, T. (2004). Preparation of emulsions using impinging streams. *AIChE Journal*, 50:1636–1639.

[Kiss *et al.*, 2011] KISS, N., BRENN, G., PUCHER, H., WIESER, J., SCHELER, S., JENNEWEIN, H., SUZZI, D. et KHINAST, J. (2011). Formation of O/W emulsions by static mixers for pharmaceutical applications. *Chemical Engineering Science*, 66:5084–5094.

[Knob et J.-L., 1977] KNOB, A. et J.-L., L. (1977). Etude de la précision de l'estimation de la densité spectrale de puissance croisiée, obtenue par transformation de fourier de la fonction de corrélation. *Annales des Télécommunications*, 32(7-8):248–256.

[Kockmann, 2008] KOCKMANN, N. (2008). *Transport Phenomena in Micro Process Engineering*. Heat and Mass Transfer, Springer.

[Kumar *et al.*, 2006] KUMAR, M., KERIHUEL, A., BELLETTRE, J. et TAZEROUT, M. (2006). Ethanol animal fat emulsions as a diesel engine fuel ? Part 2 : Engine test analysis. *Fuel*, 85(17-18):2646–2652.

[Larpent, 1995] LARPENT, C. (1995). Tensioactifs. *Techniques de l'ingénieur*, K342:1–15.

[Leal-Calderon *et al.*, 2007] LEAL-CALDERON, F., SCHMITT, V. et BIBETTE, J. (2007). *Emulsion science : basic principles*. Springer.

[Lemenand, 2002] LEMENAND, T. (2002). *Etude expérimentale de l'intensification des transferts dans un échangeur-réacteur statique : mélange de deux fluides non miscibles*. Thèse de doctorat, Nantes.

[Li *et al.*, 2011] LI, X.-B., LI, F.-C., YANG, J.-C., KINOSHITA, H., OISHI, M. et OSHIMA, M. (2011). Study on the mechanism of droplet formation in T-junction microchannel. *Chemical Engineering Science*, 69(1):340–351.

[Liu, 1994] LIU, L., V. N. B. V. C. E. A. M. A. M. (1994). Analysis of the Copolar Correlation Coefficient between Horizontal and Vertical Polarizations. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 6323.

[Mabille *et al.*, 2003] MABILLE, C., LEAL-CALDERON, F., BIBETTE, J. et SCHMITT, V. (2003). Monodisperse fragmentation in emulsions : Mechanisms and kinetics Monodisperse fragmentation in emulsions :. *Europhysics Letters*, 61(5):708–714.

[Massoli *et al.*, 1989] MASSOLI, P., BERETTA, F. et D'ALESSIO, A. (1989). Single droplet size, velocity, and optical characteristics by the polarization properties of scattered light. *Applied Optics*, 28:1200–1205.

[Mattiello *et al.*, 1992] MATTIELLO, M., COSMAI, L., PISTONE, L., BERETTA, F. et MASSOLI, P. (1992). Experimental evidence for microexplosionsin water/fuel oil emulsion flames inferred by laser light scattering. *Symposium (International) on Combustion*, 24:1573–1578.

[Mcclements, 2005] MCCLEMENTS, D. (2005). *Food emulsions : principles, practice and techniques*. CRC.

[Mckinley, 2005] MCKINLEY, G. H. (2005). Dimensionless Groups For Understanding Free Surface Flows of Complex Fluids. *Society Rheology bulletin*, 74(2):6–9.

[Melling, 1997] MELLING, A. (1997). Tracer particles and seeding for particle image velocimetry. *Measurement Science and Technology*, 1406.

[Metijevic, 1969] METIJEVIC, E. (1969). *Surface and Colloid Science*, volume 1 et 2. Wiley Interscience.

[Montillet *et al.*, 2013] MONTILLET, A., NEDJAR, S. et TAZEROUT, M. (2013). Continuous production of water-in-oil emulsion using micromixers. *Fuel*, 106:410–416.

[M.S. Kumar, 2009] M.S. KUMAR, J. Bellettre, M. T. (2009). The use of biofuel emulsions as fuel for diesel engines : a review. *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers Part A Journal of Power and Energy*, 223(7):729–742.

[Muller-Fischer *et al.*, 2008] MULLER-FISCHER, N., TOBLER, P., DRESSLER, M., FISCHER, P. et WINDHAB, E. (2008). Single bubble deformation and breakup in simple shear flow. *Experiments in Fluids*, pages 917–926.

[Mura *et al.*, 2012] MURA, E., JOSSET, C., LOUBAR, K., BELLETTRE, J. et MASSOLI, P. (2012). Experimental study of the water in oil emulsions features by differential scanning calorimetry analysis. *Applied Energy*, 97:834–840.

[Mura *et al.*, 2010] MURA, E., JOSSET, C., LOUBAR, K., HUCHET, G. et BELLETTRE, B. (2010). Effect of dispersed water droplet size in microexplosion phenomenon for water in oil emulsion. *Atomization and spray*, 20(9):791–799.

[Nedjar *et al.*, 2011] NEDJAR, S., MONTILLET, A. et TAZEROUT, M. (2011). Synthèse en continu d'émulsions de type « eau dans huile » à l'aide de micromélangeurs. *In la Société Française de Génie des Procédés*. Poster - 13e congrès de la société Française de Génie des Procedés.

[Ong *et al.*, 2007] ONG, W.-L., HUA, J., ZHANG, B., TEO, T.-Y., ZHUO, J., NGUYEN, N.-T., RANGANATHAN, N. et YOBAS, L. (2007). Experimental and computational analysis of droplet

formation in a high-performance flow-focusing geometry. *Sensors and Actuators A : Physical*, 138:203–212.

[Pena, 2003] PENA, A. (2003). *Dynamic aspects of emulsion stability*. Thèse de doctorat, Rice, Houston.

[Poré, 1992] PORÉ, J. (1992). *Emulsion, micro-émulsions, émulsions multiples*. Techniques des Industries des Corps Gras.

[Preziosi *et al.*, 2013] PREZIOSI, V., PERAZZO, A., CASERTA, S., TOMAIUOLO, G. et GUIDO, S. (2013). Phase Inversion Emulsification. *Chemical Engineering Transactions*, 32:1585–1590.

[Quéré, 2012] QUÉRÉ, D. (2012). Lois du mouillage et de l'imprégnation. *Techniques de l'ingénieur*, J2140:0–15.

[Rott, 1990] ROTT, N. (1990). Note on the history of the Reynolds number. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 22:1–11.

[Salager, 2000] SALAGER, J.-L. (2000). *Pharmaceutical Emulsions and Suspensions, 2 - Formulation concepts for the emulsion maker*. Françoise Nielloud, Gilberte Marti-Mestres.

[Salim *et al.*, 2008] SALIM, A., FOURAR, M., PIRONON, J. et SAUSSE, J. (2008). Oil-water two-phase flow in microchannels : Flow patterns and pressure drop measurements. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 86(6):978–988.

[Segré et Silberberg, 1962] SEGRÉ, G. et SILBERBERG, A. (1962). Behaviour of macroscopic rigid spheres in Poiseuille flow Part 2. Experimental results and interpretation. *Journal of Fluid Mechanics*, 14:136–157.

[Sherman, 1962] SHERMAN, P. (1962). The viscosity of emulsions. *Rheologica Acta*, 2(1):74–82.

[Sivasamy *et al.*, 2011] SIVASAMY, J., WONG, T.-N., NGUYEN, N.-T. et KAO, L. T.-H. (2011). An investigation on the mechanism of droplet formation in a microfluidic T-junction. *Microfluidics and Nanofluidics*, 11(1):1–10.

[T. Nisisako, 2002] T. NISISAKO, Toru Torii, T. H. (2002). Droplet formation in a microchannel network. *Lab on a chip*, 2(1):24–6.

[Tamir et Sobhi, 1985] TAMIR, A. et SOBHI, S. (1985). A new Two-Impinging-Streams Emulsifier. *AIChE Journal*, 31(12):2089–2092.

[Tanguy et Berlemont, 2005] TANGUY, S. et BERLEMONT, A. (2005). Application of a level set method for simulation of droplet collisions. *International Journal of Multiphase Flow*, 31(9): 1015–1035.

[Tarlet *et al.*, 2010] TARLET, D., BELLETTRE, J., TAZEROUT, M. et RAHMOUNI, C. (2010). Formulation and combustion of emulsified fuel : The changes in emission of carbonaceous residue. *International Journal of Energy Research*, 34:688–694.

[Tarlet *et al.*, 2014] TARLET, D., MURA, E., JOSSET, C., BELLETTRE, J., ALLOUIS, C. et MASSOLI, P. (2014). Distribution of thermal energy of child-droplets issued from an optimal micro-explosion. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 77:1043–1054.

[Taylor, 1932] TAYLOR, G. (1932). The viscosity of a fluid containing small drops of another fluid. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 138(834):41–48.

[Taylor, 1934] TAYLOR, G. (1934). The formation of emulsions in definable fields of flow the formation of emulsions in definable fields of flow. *The Royal Society*, 146:501–523.

[Tomoaki *et al.*, 2012] TOMOAKI, N., KUNIO, Y., MASANORI, T. et KOICHI, F. (2012). Commercial-scale demonstration of pollutant emission reduction and energy saving for industrial boilers by employing water/oil emulsified fuel. *Applied Energy*, 93:517–522.

[Utada *et al.*, 2007] UTADA, A., FERNANDEZ-NIEVES, A., STONE, H. A. et WEITZ, D. (2007). Dripping to Jetting Transitions in Coflowing Liquid Streams. *Physical Review Letters*, 99(9).

[Versluis, 2013] VERSLUIS, M. (2013). High-speed imaging in fluids. *Experiments in Fluids*, 54.

[Windhab *et al.*, 2005] WINDHAB, E., DRESSLER, M., FEIGL, K., FISCHER, P. et MEGIAS-ALGUACIL, D. (2005). Emulsion processing - from single-drop deformation to design of complex processes and products. *Chemical Engineering Science*, 60:2101–2113.

[Xu *et al.*, 2006a] XU, J., LI, S., TAN, J., WANG, Y. et LUO, G. (2006a). Preparation of highly monodisperse droplet in a T-junction microfluidic device. *AIChE Journal*, 52(9):3005–3010.

[Xu *et al.*, 2006b] XU, J., LUO, G., LI, S. et CHEN, G. (2006b). Shear force induced monodisperse droplet formation in a microfluidic device by controlling wetting properties. *Lab on a chip*, 6(1):131–136.

[Xu *et al.*, 2008] XU, J. H., LI, S. W., TAN, J. et LUO, G. S. (2008). Correlations of droplet formation in T-junction microfluidic devices : from squeezing to dripping. *Microfluidics and Nanofluidics*, 5:711–717.

[Zendejas, 2007] ZENDEJAS, F. (2007). *Diatom-Inspired Microfluidic Generation of Tunable Emulsions for Macroporous Silica*. Thèse de doctorat, EECS Department, University of California, Berkeley.

[Zhao et Middelberg, 2011] ZHAO, C.-X. et MIDDELBERG, A. (2011). Two-phase microfluidic flows. *Chemical Engineering Science*, 66(7):1394–1411.

Liste des tableaux

II.1 Aspect global des émulsions en fonction du diamètre des gouttes. 11
II.2 Les constantes de l'équation d'Einstein pour les émulsions diluées. 19
II.3 Les expressions des différents diamètres caractérisant les émulsions 23
II.4 Déformations et ruptures de gouttes en régime laminaire 33
II.5 La tension de surface des polymères fréquemment employés. 36

III.1 Caractéristiques des fluides employés. 53
III.2 Caractéristiques de la caméra LaVision HighSpeedStar 6. 60
III.3 Caractéristiques de l'objectif à fort grossissement 12x 61
III.4 Caractéristiques des composants optiques du banc d'extinction laser. 66

IV.1 Données d'émulsification à travers le micro-système "600-600" à T=25° C. 79
IV.2 Données d'émulsification. 85
IV.3 Données d'émulsification. 89
IV.4 Données d'émulsification. 94

V.1 Tests réalisés sur le micro-canal 300 x 600 μm (1/2) 102
V.2 Tests réalisés sur le micro-canal 300 x 600 μm (2/2) 103
V.3 Caractéristiques des quatre cas expérimentés. 129
V.4 Forces intervenant dans le fractionnement par les jets impactants confinés. 130

VI.1 Conditions d'émulsifications pour les deux configurations : simple et en série des micro-canaux. 144
VI.2 Tests de comparaison entre les configurations en série et simple des micro-canaux, tests sans Span83 et Butan-1-ol. 145
VI.3 Tests de comparaison entre les configurations simple et en série des micro-canaux, tests avec 0,3 % de Span83. 148
VI.4 Tests de comparaison entre les configurations simple et en série des micro-canaux, tests avec 5 % Butan-1-ol. 150

VI.5 Confrontation des dépenses énergétiques, sous forme de chute de pression. . . . 152
VI.6 Données d'émulsification (ordre de grandeur des principaux nombres sans dimension). . . . 162
VI.7 Données d'émulsification et ordre de grandeur. . . . 163
8 Les angles de contact mesurés. . . . 183
9 Les tensions de surface de polymères communs (1/2). . . . 184
10 Les tensions de surface de polymères communs (2/2). . . . 185
11 Puissances de pompage. . . . 190

Table des figures

I.1 Principe de la micro-explosion 3
I.2 Principe d'émulsification. 4
I.3 Forme géométrique des canaux 5
I.4 Mécanismes de formation des gouttes 5
I.5 Micro-système conçu pour l'émulsification. 6

II.1 Émulsions simples 10
II.2 Émulsions multiples. 10
II.3 Les phénomènes intervenant dans la déstabilisation des émulsions 12
II.4 Schéma d'une goutte d'eau dans l'huile et d'une goutte d'huile dans l'eau en présence d'émulsifiant 16
II.5 Échelle HLB pour les différents types de dispersions 18
II.6 Influence de la fraction volumique dispersée φ sur la viscosité de l'émulsion μ_{emul} pour μ_c = 0,052 $Pas.s$ et T constant, selon l'équation II.9. 21
II.7 Influence de la viscosité de la phase continue μ_c sur la viscosité de l'émulsion μ_{emul} pour μ_d = 0,001 $Pas.s$ et T constant, selon l'équation II.9. 21
II.8 Distributions de taille de gouttes retrouvées couramment dans les émulsions . . 22
II.9 Test d'arrêt de l'analyse granulométrique. 23
II.10 Effet du rapport des viscosités p sur la polydispersité de l'émulsion P. 25
II.11 Les trois contraintes induites par ue écoulement laminaire 26
II.12 Le nombre capillaire critique pour un écoulement de cisaillement et d'élongation en conditions de déformation quasi-statique 32
II.13 Les procédés mécaniques d'émulsification 34
II.14 Les trois principales géométriques répertoriées au sein des systèmes micro-fluidiques 38
II.15 Mécanismes de formation des gouttes : (a)-Compression[Sivasamy *et al.*, 2011], (b)-Egouttement et (c)-Jaillissement [Guillot *et al.*, 2008]. 39
II.16 Typologies de transport des émulsions 40

II.17 Micro-canal d'émulsification [Montillet *et al.*, 2013]. 41
II.18 Représentation schématique des configuration expérimentées 42
II.19 Comparaison des procédés d'émulsification en régime laminaire. 43
II.20 Onde plane harmonique 44
II.21 État de polarisation de la lumière 45
II.22 Test de polarisation de la diode laser. 45
II.23 Représentation de la forme du faisceau laser. 46
II.24 Sections efficaces de diffusion de lumière polarisée verticalement (Cvv) et horizontalement (Chh) en fonction du diamètre des particules [Massoli *et al.*, 1989]. . 48

III.1 Banc d'émulsification. 51
III.2 Balance Sartorius-mse2203. 52
III.3 Capteur de pression Gems - 3100. 52
III.4 Technique de la lame selon Wilhelmy (KRUSS K-12)[1]. 53
III.5 Technique de la goutte pendante eau dans huile (KRUSS-DSA30). 53
III.6 Évolution de la tension à l'interface eau/huile à T = 25 °C et une concentration de Span83 variant de 0 à 1 % en masse. 54
III.7 Évolution de la tension à l'interface eau-huile ($\gamma_{e/h}$) à T = 25 °C et détermination de la concentration micellaire critique (CMC). 54
III.8 Mesure du débit. 55
III.9 Exemple de mesure de signal de pression. 56
III.10Microscope optique Zeiss Axio Imager M2. 57
III.11Cellules de numérations : a - cellule de Neubauer améliorée en verre, b - cellule en PMMA usinée. 57
III.12Vue sous microscope d'une émulsion sur une cellule de numération en verre. . . 58
III.13Vue sous microscope d'une émulsion sur une cellule de numération en PMMA. . 58
III.14Distribution granulométrique pour la cellule de numération en verre (images reconstituées à partir de plusieurs champs). 58
III.15Distribution granulométrique pour la cellule de numération en PMMA (images reconstituées à partir de plusieurs champs). 58
III.16Disposition de la caméra rapide en mode de fonctionnement. 61
III.17Synchronisation de la caméra rapide et des signaux de pression. 62
III.18Le Banc d'essai optique. 65
III.19Schéma optique simplifié du banc d'extinction laser. 67
III.20Premier test sur le canal Dh = 300 μm. 68

III.21 Premier test sur le canal Dh = 600 μm. 68
III.22 Image obtenues avec le profilomètre sur le fond du micro-canal : a - mise au point avec le profilomètre sur le fond des canaux d'admission d'huile et d'émulsion, b - représentation d'une coupe transversale d'un canal obtenu par usinage à la fraise, c - mise au point avec le profilomètre sur le fond du canal d'admission d'eau. 68
III.23 Configuration du micro-canal pour les tests de calibration. 69
III.24 Localisation de la zone de pointage du laser. 70
III.25 Atténuation du signal lumineux en fonction de la fraction massique d'eau. 71
III.26 Variation de l'atténuation du signal lumineux en fonction du diamètre des gouttes pour une fraction massique de 1,5 % l'eau. 72
III.27 Schématisation du faisceau laser polarisé et envoyé à travers le micro-canal. . . . 74

IV.1 Modifications apportées au micro-système expérimenté. 77
IV.2 Représentation en 3D du croisement du micro-système "600-600" en croix. 78
IV.3 Test 1 : Q_e=4,48 mL/min avec 0,1 % de Span83, d_{10}=33,16 μm. 82
IV.4 Test 2 : Q_e=6,21 mL/min avec 0,1 % de Span83, d_{10}=34,92 μm. 82
IV.5 Test 3 : Q_e=9,65 mL/min avec 0,1 % de Span83, d_{10}=19,24 μm. 83
IV.6 Test 4 : Q_e=13,15 mL/min avec 0,1 % de Span83, d_{10}=21,89 μm. 83
IV.7 Micro-canal en forme de croix : (A) à sections uniformes ("600-600"), (B) à marche variable. 84
IV.8 Comparaison des sections de passage pour les différents canaux appartenant aux micro-canaux en croix expérimentés. 84
IV.9 Micro-canal "300-600", Q_e = 8,98 mL/min, d_{10} = 8,18 μm. 86
IV.10 Micro-canal "300-600", Q_e = 12,68 mL/min, d_{10} = 8,07 μm. 86
IV.11 Micro-canal "300-800", Q_e = 4,95 mL/min, d_{10}=15,33μm. 87
IV.12 Micro-canal "300-800", Q_e = 7,00 mL/min, d_{10}=12,22μm. 87
IV.13 Micro-canal "300-800", Q_e = 10,07 mL/min, d_{10}=9,39μm. 87
IV.14 Micro-canal "300-800", Q_e = 7,19 mL/min, d_{10}=13,09μm. 87
IV.15 Micro-canal "300-800", Q_e = 10,57 mL/min, d_{10}=11,80μm. 88
IV.16 Micro-canal "200-600", Q_e = 6,8 mL/min et d_{10}=18,18μm. 89
IV.17 Micro-canal "200-600", Q_e = 9,98 mL/min et d_{10}=12,42μm. 89
IV.18 Micro-canal "200-800", Q_e = 3,14 mL/min et d_{10}=18,23μm. 90
IV.19 Micro-canal "200-800", Q_e = 5,02 mL/min et d_{10}=17,92μm. 90
IV.20 Micro-canal "200-800", Q_e = 4,73 mL/min et d_{10}=12,82μm. 90

IV.21 Micro-canal "200-800", Q_e = 9,57 mL/min et d_{10}=11,14μm. 90
IV.22 Pression relative de l'huile. 91
IV.23 Pression relative de l'eau. 91
IV.24 Influence du nombre capillaire sur la granulométrie de dispersion. 92
IV.25 Évolution de la force de cohésion exprimée par mètre cube d'eau en fonction de cette fraction volumique d'eau dispersée. 95
IV.26 Interface crée en fonction de l'énergie dépensée par unité de masse d'émulsion générée. 96
IV.27 Évolution du diamètre moyen d_{10} en fonction de la quantité d'émulsion produite par unité de surface d'émulsion et d'énergie dépensée. 97

V.1 Micro-canal "300-600". 101
V.2 Le diamètre moyen des gouttelettes en fonction du nombre capillaire 104
V.3 Zone d'impact du micro-canal "300-600". 105
V.4 Q_e = 9,53 mL/min et Q_h = 68,31 mL/min avec 0,3 % en masse de Span83. La fréquence d'acquisition : 10 kHz. 106
V.5 Q_e = 9,74 mL/min et Q_h = 73,99 mL/min avec 0 % en masse de Span83. La fréquence d'acquisition : 10 kHz. 106
V.6 Q_e = 14,58 mL/min et Q_h = 71,53 mL/min avec 0 % en masse de Span83. La fréquence d'acquisition : 10 kHz. 106
V.7 Q_e = 13,91 mL/min et Q_h = 78,16 mL/min, avec 5 % en masse de Butan-1-ol. La fréquence d'acquisition : 10 kHz. 106
V.8 Visualisation d'un écoulement avec Q_e = 9,06 mL/min et Q_h = 62,84 mL/min avec 0,3 % en masse de Span83 (1/2). La fréquence d'acquisition : 1 kHz. 108
V.9 Visualisation d'un écoulement avec Q_e = 9,06 mL/min et Q_h = 62,84 mL/min avec 0,3 % en masse de Span83 (2/2). La fréquence d'acquisition : 1 kHz. 109
V.10 Schéma des visualisations de la sortie du micro-canal "300-600". 110
V.11 Q_e = 5,09 mL/min et Q_h = 68,47 mL/min avec 0 % en masse de Span83. 110
V.12 Q_e = 7,10 mL/min et Q_h = 64,86 mL/min 0 % en masse de Span83. 111
V.13 Q_e = 10,04 mL/min et Q_h = 59,53 mL/min 0 % en masse de Span83. 111
V.14 Q_e = 15,17 mL/min et Q_h = 67,33 mL/min 0 % en masse de Span83. 111
V.15 Q_e = 10,04 mL/min et Q_h = 59,53 mL/min 0 % en masse de Span83. 112
V.16 Q_e = 15,17 mL/min et Q_h = 67,33 mL/min 0 % en masse de Span83. 112
V.17 Émulsion obtenue par le présent procédé d'émulsification. 113
V.18 Analyse dimensionnelle appliquée sur le micro-canal 300×600. 115

V.19 Analyse dimensionnelle appliquée sur le micro-canal "300-600". 117
V.20 Application de la conservation d'énergie sur le canal en croix dans le cas de l'émulsification à jets en impact. 118
V.21 La conservation de l'énergie mécanique théorique $Ca^* = \sqrt{8}\,Oh$ est comparée aux données expérimentales issues des tests d'émulsification à travers le "300-600". 120
V.22 Comparaison des deux modèles de prédiction du diamètre des gouttelettes. . . . 121
V.23 Schéma de mesure de la lumière collectée. Les points rouges représentent les points de pointage du faisceau laser focalisé. 122
V.24 Coupe longitudinale du micro-canal traversé par le faisceau laser (à gauche). Volume illuminé par le laser en traversant la zone d'émulsification (à droite). . . 123
V.25 Signal lumineux enregistré à l'aide d'un oscilloscope traversant le micro-canal et l'émulsion en formation converti en tension : Type 1. 123
V.26 Tests en fréquence de la lumière laser collectée à travers le PMMA du micro-canal, l'eau pure et l'huile de tournesol pure. 124
V.27 Signal lumineux enregistré à l'aide d'un oscilloscope traversant le micro-canal et l'émulsion en formation converti en tension : Type 2. 125
V.28 Signal lumineux capturé par oscilloscope traversant le micro-canal et l'émulsion en formation converti en tension : Type 3. 126
V.29 Interprétation statistique des signaux de la lumière laser collectée. 126
V.30 Post-traitement. 127
V.31 Test (A). 132
V.32 Test (B). 132
V.33 Test (C). 133
V.34 Test (D). 133
V.35 Représentation de la limite entre la diffusion simple de la diffusion multiple [Calabria *et al.*, 2009]. 135
V.36 Les configurations d'écoulement liquide-liquide, obtenues par la cartographie de la collecte de la lumière polarisée à travers le canal de sortie de l'émulsion. . . 136
V.37 Extinction laser au niveau du croisement du micro-canal. 137

VI.1 Schéma de principe de la mise en série des micro-canaux "300-600" et "600-600". . 142
VI.2 Passage d'une représentation p.d.f. vers une représentation en c.d.f. 144
VI.3 Fonction p.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé Q_e = 4,24 mL/min et Q_h = 71,84 mL/min sans Span83. 146

VI.4 Fonction c.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé Q_e = 4,24 mL/min et Q_h = 71,84 mL/min sans Span83. 146
VI.5 Fonction p.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé Q_e = 6,82 mL/min et Q_h = 72,49 mL/min sans Span83. 147
VI.6 Fonction c.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé Q_e = 6,82 mL/min et Q_h = 72,49 mL/min sans Span83. 147
VI.7 Fonction p.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé Q_e = 9,46 mL/min et Q_h = 72,63 mL/min sans Span83. 147
VI.8 Fonction c.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé Q_e = 9,46 mL/min et Q_h = 72,63 mL/min sans Span83. 147
VI.9 Fonction p.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé Q_e = 14,56 mL/min et Q_h = 72,12 mL/min sans Span83. 148
VI.10 Fonction c.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé Q_e = 14,56 mL/min et Q_h = 72,12 mL/min sans Span83. 148
VI.11 Fonction p.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé, tests avec 0,3 % de Span83. 149
VI.12 Fonction c.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé, tests avec 0,3 % de Span83. 149
VI.13 Fonction p.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé, tests avec 5 % de Butanol. 150
VI.14 Fonction c.d.f. de la distribution représentée en fonction du diamètre normalisé, tests avec 5 % de Butanol. 150
VI.15 Évolution de d_{10} en fonction du débit volumique d'eau, tests sans Span83. 151
VI.16 Valeurs de d_{10} pour l'ensemble des tests affichés sur le tableau VI.1. 151
VI.17 Variation de la surface créée par unité de volume d'émulsion en fonction de la dépense d'énergie par kilogramme d'émulsion produite. 153
VI.18 Évolution du diamètre de sauter en fonction de la quantité d'émulsion produite par unité d'énergie dépensée et unité de longueur d'interface générée. 153
VI.19 Visualisation de l'écoulement dans le micro-système 600-600 placé dans un montage en série après le micro-système "300-600". Débit d'émulsion Q_{emul} = 79,31 mL/min. 154
VI.20 Visualisations du micro-canal "600-600" pour un montage en série. Q_h = 72,49 mL/min et Q_e = 6,82 sans Span83. 155

VI.21 Description des cinq étapes principales du mécanisme de fractionnement liquide-liquide dans le micro-canal "600-600". 157
22 Dépôt d'une goutte d'eau sur la nouvelle cellule en PMMA. 183
23 Dépôt d'une goutte d'eau sur la cellule d'énumération en verre. 183
24 Schéma électrique de la carte électronique. 186
25 Image de la carte électronique supportant la photo-diode. 186
26 Mesure du bruit de la carte électronique accompagnant la photo-diode. 187
27 Calibration de la technique d'extinction laser. 188
28 Images de l'angle droit de dimensions 1024 x 192 pixels, fréquence d'acquisition 100 kHz. 189
29 Signaux bruts acquis sous fréquence 10 kHz. 192
30 Portion des signaux présentés précédemment. 192
31 D.S.P. croisée du signal de pression d'huile. 192
32 D.S.P. croisée du signal de pression d'eau 192
33 D.S.P. croisée du signal d'extinction laser. 193

Annexes

.1 Comparaison de la mouillabilité des cellules de numération en verre et en PMMA par la méthode de la goutte d'eau déposée.

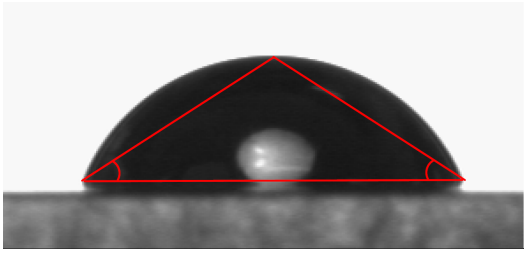


FIG. 22: Dépôt d'une goutte d'eau sur la nouvelle cellule en PMMA.

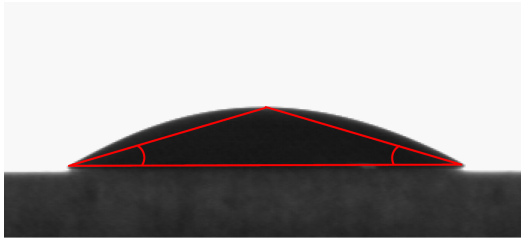


FIG. 23: Dépôt d'une goutte d'eau sur la cellule d'énumération en verre.

Cette mesure est effectuée sur un appareil de mesure de la tension de surface (goniomètre Digidrop GBX). Une capture d'image de la goutte d'eau déposée sur le substrat, en l'occurrence la cellule en verre ou la cellule en PMMA, est effectué, on trace manuellement le triangle rouge dans le logiciel accompagnant l'appareil. Le logiciel s'occupe ensuite d'évaluer les angles à savoir l'angle gauche (A.G.) et l'angle droit (A.D.).

N°	Liquide	Substrat	A.G.	A.D.	Moyen	cos	WA = y L cos(1+cos)	S = y L (cos-1)
1	Eau	PMMA	67,8	67,3	67,6	0,382	100,60	- 45,00
2	Eau	PMMA	57,5	57,5	57,5	0,537	111,92	- 33,68
3	Eau	PMMA	68,5	68,5	68,5	0,367	99,48	- 46,12
4	Eau	Verre	33,4	33,4	33,4	0,835	133,58	- 12,02
5	Eau	Verre	37,5	37,2	37,3	0,795	130,67	- 14,93

TAB. 8: Les angles de contact mesurés.

Le tableau 8 récapitule les angles formés par une gouttelette d'eau déposée sur les deux substrats à savoir en verre et en PMMA. La surface du substrat en PMMA a subit un polissage de finition avec un produit de polissage pour plexiglas contenant des micro-billes. Les valeurs indiquées sur le tableau 8 montrent que le verre est plus mouillant que le PMMA.

.2 Tensions de surface de solides et fluides communs.

Les valeurs de la tension de surface de quelques liquides communs sont données dans les tableaux 9 et . Les données sont fournies par la compagnie DataPhysics Instruments GmbH (www.surface-tension.de).

Nom du polymère	Réf.	Tension de surface [mN/m]	Coef. de température [mN/m.K]	Contribution dispersive [mN/m]	Contribution Polaire [mN/m]
Polyethylene-linear PE	9002-88-4	35,7	-0,057	35,7	0
Polyethylene-branched PE	9002-88-4	35,3	-0,067	35,3	0
Polypropylene-isotactic PP	25085-53-4	30,1	-0,058	30,1	0
Polyisobutylene PIB	9003-27-4	33,6	-0,064	33,6	0
Polystyrene PS	9003-53-6	40,7	-0,072	(34,5)	(6,1)
Poly-a-methyl styrene PMS (Polyvinyltoluene PVT)	9017-21-4	39,0	-0,058	(35)	(4)
Polyvinyl fluoride PVF	24981-14-4	36,7	-	(31,2)	(5,5)
Polyvinylidene fluoride PVDF	24937-79-9	30,3	-	(23,3)	(7)
Polytrifluoroethylene P3FEt/PTrFE	24980-67-4	23,9	-	19,8	4,1
Polytetrafluoroethylene PTFE (Teflon)	9002-84-0	20	-0,058	18,4	1,6
Polyvinylchloride PVC	9002-86-2	41,5	-	(39,5)	(2)
Polyvinylidene chloride PVDC	9002-85-1	45,0	-	(40,5)	(4,5)
Polychlorotrifluoroethylene PCTrFE	25101-45-5	30,9	-0,067	22,3	8,6
Polyvinylacetate PVA	9003-20-7	36,5	-0,066	25,1	11,4
Polymethylacrylate (Poly-methacrylic acid) PMAA	25087-26-7	41,0	-0,077	29,7	10,3
Polyethylacrylate PEA	9003-32-1	37,0	-0,077	30,7	6,3
Polymethylmethacrylate PMMA	87210-32-0	41,1	-0,076	29,6	11,5
Polyethylmethacrylate PEMA	9003-42-3	35,9	-0,070	26,9	9,0
Polybutylmethacrylate PBMA	25608-33-7	31,2	-0,059	26,2	5,0

TAB. 9: Les tensions de surface de polymères communs (1/2).

Nom du polymère	Réf.	Tension de surface [mN/m]	Coef. de température [mN/m.K]	Contribution dispersive [mN/m]	Contribution Polaire [mN/m]
Polyisobutylmethacrylate PIBMA	9011-15-8	30,9	-0,060	26,6	4,3
Poly(t-butylmethacrylate) PtBMA	-	30,4	-0,059	26,7	3,7
Polyhexylmethacrylate PHMA	25087-17-6	30,0	-0,062	(27,0)	(3)
Polyethyleneoxide PEO	25322-68-3	42,9	-0,076	30,9	12,0
Polytetramethylene oxide PTME (Polytetrahydrofurane PTHF)	25190-06-1	31,9	-0,061	27,4	4,5
Polyethyleneterephthalate PET	25038-59-9	44,6	-0,065	(35,6)	(9)
Polyamide-6,6 PA-66	32131-17-2	46,5	-0,065	(32,5)	(14)
Polyamide-12 PA-12	24937-16-4	40,7	-	35,9	4,9
Polydimethylsiloxane PDMS	9016-00-6	19,8	-0,048	19,0	0,8
Polycarbonate PC	24936-68-3	34,2	-0,04	27,7	6,5
Polyetheretherketone PEEK	31694-16-13	42,1	-	36,2	5,9

TAB. 10: Les tensions de surface de polymères communs (2/2).

Les cellules grisées représentent les polymères couramment rencontrés dans la vie quotidienne comme :

- **le Teflon en plomberie,**
- **le PVC des canalisations,**
- **le plexiglas pour les vitres,**
- **le PET des bouteilles de Soda.**

.3 Carte électronique portant la photo-diode

Cette Carte électronique est équipée d'un : OPA 659, amplificateur opérationnel large bande, le tension d'alimentation conseillée : -6V et +6V et le courant de sortie max : 100 mA. Cette carte alors est employée comme amplificateur Transimpédance à large bande pour photo-diode.

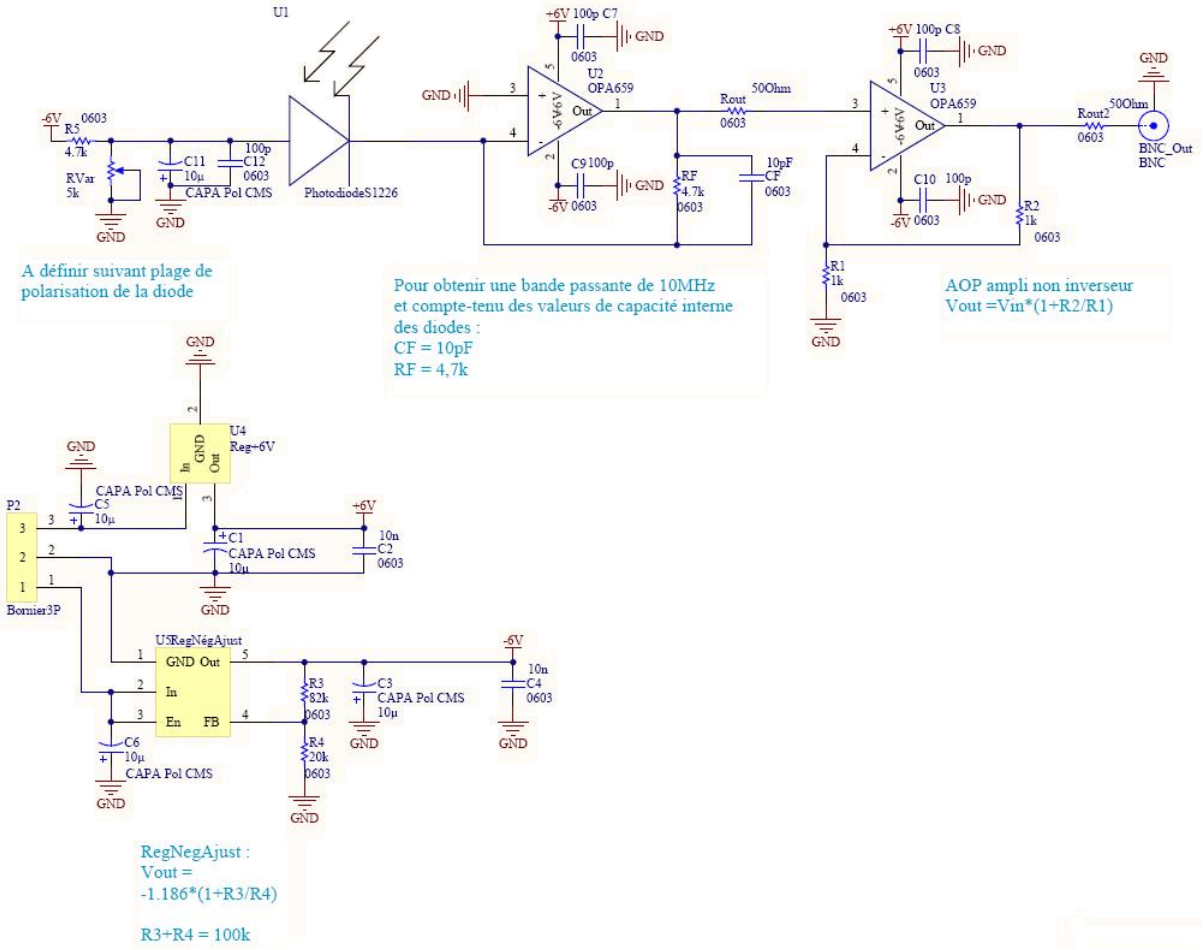


FIG. 24: Schéma électrique de la carte électronique.

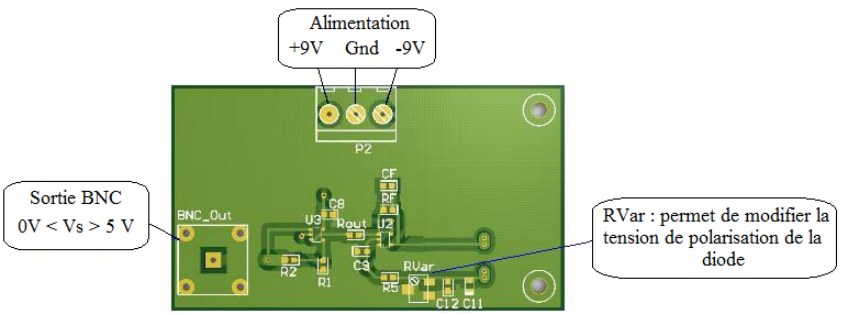


FIG. 25: Image de la carte électronique supportant la photo-diode.

Le bruit de la carte électronique pour photo-diode a été mesuré pour une fonctionnement à vide c'est-à-dire que la carte est complètement immergé dans le noir sans aucune excitation lumineuse. Sachant que nous avons utilisé un couplage C-C, le bruit lié à l'électronique composant la carte portant la photo-diode n'excède pas 0,02 Volts (voir la figure 26). sachant que la pleine échelle de nos mesure est de 2,2 volts, 0,02 constitue un bruit de 9 $^{o}/_{oo}$.

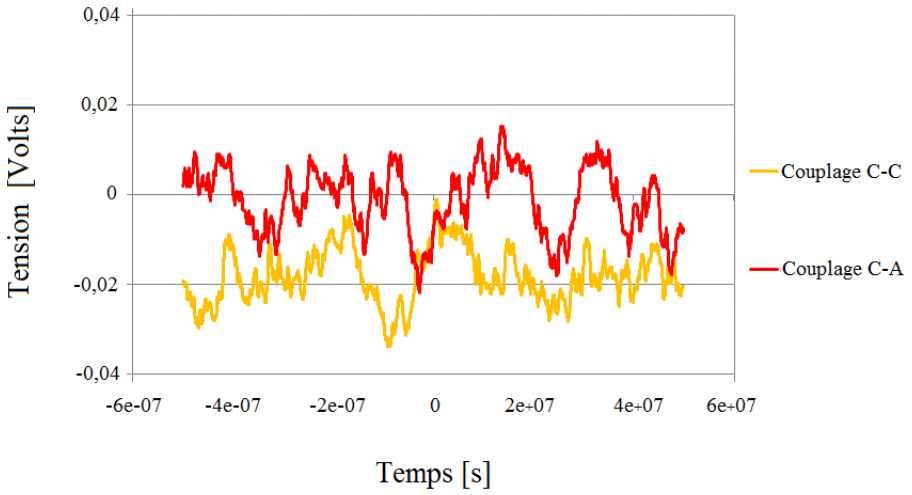


FIG. 26: Mesure du bruit de la carte électronique accompagnant la photo-diode.

.4 Exemple de lumière laser collectée dans un micro-canal.

Le but de cette expérience étant d'investiguer une zone du canal juste en sortie d'un coude droit (Angle de 90°). On a choisi le micro-système "600 - 600" auquel on a obstrué deux canaux sur les quatre initialement présents. Une pré-émulsion est introduite comme indiqué par la flèche de couleur verte sur la figure 27. L'émulsion possède une fraction volumique en eau de 1,5 % pour une phase continue (huile de tournesol) contenant 0,1 % en masse de SPAN83 (le diamètre moyen des gouttelettes est d_{av} = 18 μm). Le débit de la pré-émulsion est égal à 50 ml / min en entrée. Ce changement brusque de direction d'écoulement fait subir à la pré-émulsion une contrainte de cisaillement continue au début du canal horizontal dont l'intensité s'estompe à mesure que la pré-émulsion progresse dans le canal horizontal. Les mesures de lumière collectée sont effectuées aux endroits repérés par les points rouges sur la figure 27.

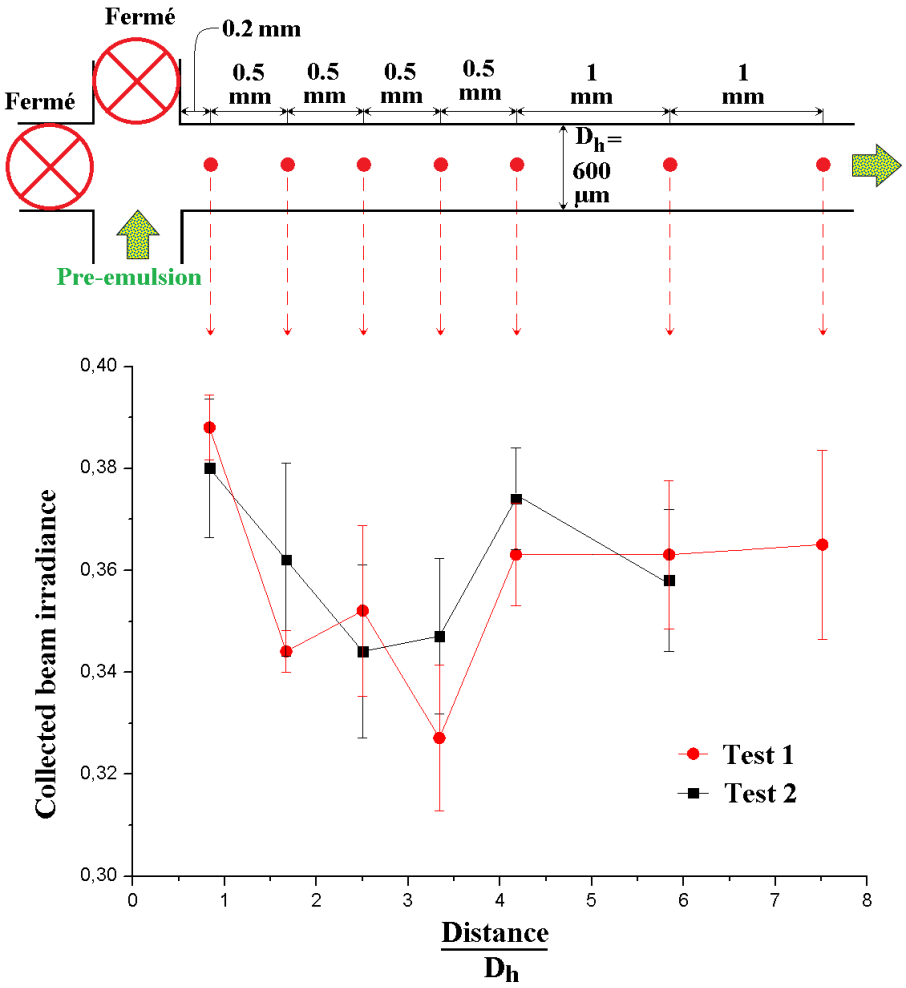


FIG. 27: Calibration de la technique d'extinction laser.

Le rapport lumière incidente sur la lumière collectée (I_t / I_0) mesuré au centre du canal horizontal à interval de 0,5 mm couvrant une distance de 7,5 Dh (Dh = 600 μm). Les résultats

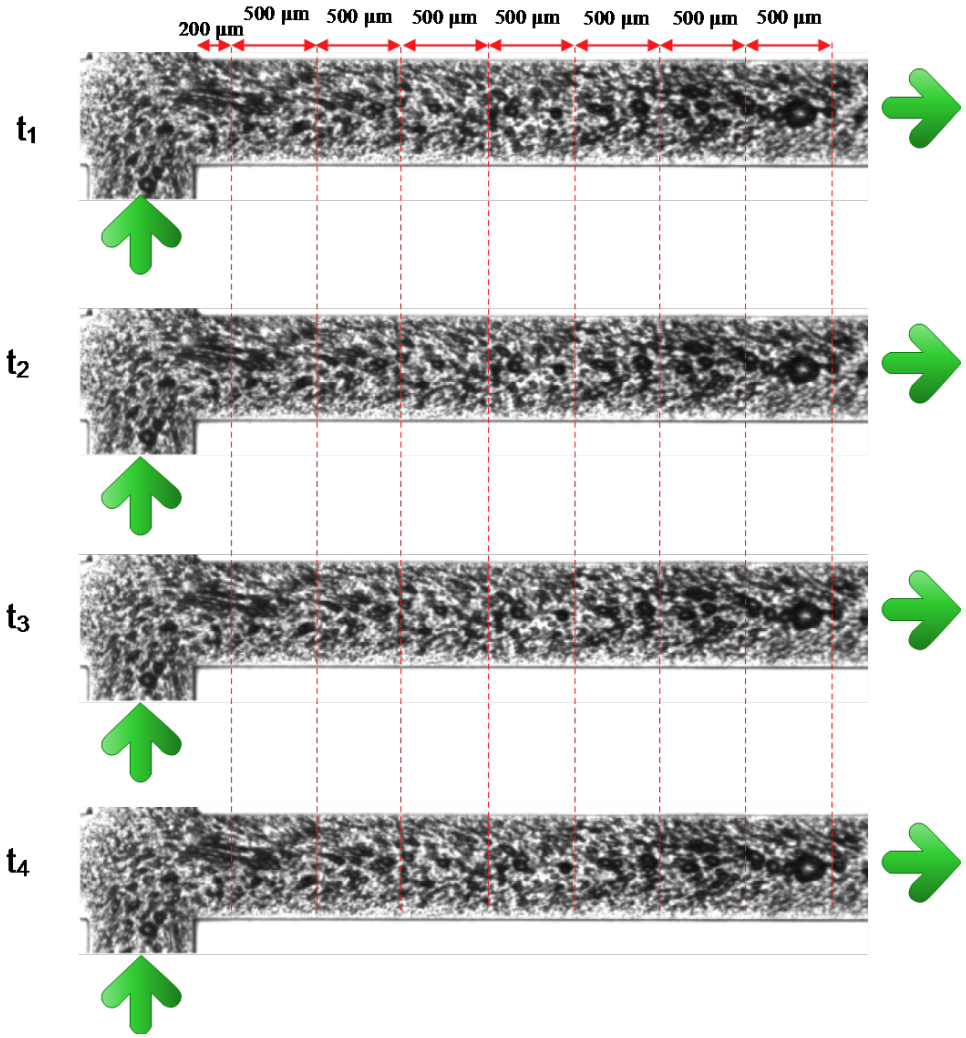


FIG. 28: Images de l'angle droit de dimensions 1024 x 192 pixels, fréquence d'acquisition 100 kHz.

de cette mesure laser indiquent la présence d'une forte atténuation juste en entrée du canal horizontal sur une distance de 2 mm. Cela est expliqué par une forte densité de présence de phase dispersée. En effet la figure 28 montre que le changement brusque de direction d'écoulement d'un angle de 90° provoque un cisaillement des gouttelettes d'eau après qu'elles aient été entrainées vers la paroi supérieure.

Au-delà de cette limite, on assiste à une stabilisation de ce rapport (I_t / I_0) indiquant une stabilisation du coefficient d'atténuation α_{ext}.

.5 Puissance de pompage :

Afin de déterminer la puissance consommée par les pompes lors d'une opération de pompage, elles ont été soumise aux conditions réelles d'utilisation. Durant ces tests, un multimètre a été connecté aux pompes permettant de mesurer le courant (Ampère) et la tension (Volt) d'alimentation de chaque pompe. Les résultats obtenus sont consignés dans le tableau 11. **Les débits affichés sur ce tableau représentent uniquement les débits de consigne qui diffèrent des débits réelles mesurés à l'aides des balances de précisions**. Le débit d'huile est maintenu fixe à 100 mL/min et uniquement le débit d'eau a été varié de 5 à 15 mL/min.

Tests	**Pompe 1 (eau)** [mL/min]	**Pompe 2 (huile)** [mL/min]	**Tension** [Volt]	**Courant** [Ampère]	**S** [VA]	**P** [Watt]
Mesures sur la pompe 1	5	100	224	0,200	44,80	-
	7	100	224	0,201	45,02	-
	10	100	224	0,202	45,25	-
	15	100	224	0,206	46,14	-
Mesures sur la pompe 2	5	100	224	0,255	57,12	-
	7	100	224	0,258	57,69	-
	10	100	224	0,256	57,34	-
	15	100	224	0,260	58,24	-

TAB. 11: Puissances de pompage.

Sachant que :

- la puissance "apparente" : S = U . I [VA]
- la puissance "active" : P = U . I . cos Φ [watts]
- la puissance "réactive" : Q = U . I . tan Φ [VAR]
- Φ représente le déphasage entre le courant "I" et tension "U" tel que : cos Φ =]0 : 1[

La puissance active "P" est la puissance indiquée sur les appareils électriques comme les pompes employées. Pour un déphasage "Φ" entre le courant "I" et la tension "U" maximum de 90°, la puissance active "P" et la puissance apparente "S" sont équivalente. Dans une situation où le déphasage est inférieur à 90° la puissance active "P" sera nécessairement inférieure à la puissance apparente "S". On conclut que la puissance de pompage de l'eau varie entre 44 et 46 Watts et la puissance de pompage de l'huile est autour de 57 Watts.

.6 Traitement de signal d'extinction Laser.

Nous avons tenté de pousser plus loin les investigations du signal d'extinction laser mais aussi des signaux de pression enregistrés de manière synchronisée. Ceci dans le but de déceler si des "signatures" de l'écoulement sont distinguables sur ces signaux. La figure 29 présente des exemples de signaux acquis sous la forme d'une tension, en ordonnées, en fonction du temps en abscisses. La fréquence d'acquisition est de 10 kHz, et les débits de consigne pour les pompes sont de : 100 mL/min pour l'huile de tournesol et 15 mL/min pour l'eau, durant ces essais. Aucun émulsifiant n'a été employé lors de ces tests de caractérisation des signaux de pressions et d'extinction laser. La figure 30 montre une portion du signal total. La caractéristique des pompes à pistons est de présenter un mouvement alternatif ; cette caractéristique s'observe sur les deux signaux de pression représentés en couleur bleu et vert. Sur la courbe en bleu représentant l'évolution du signal de pression d'huile en fonction du temps, la période d'oscillation est d'une demi seconde (f = 2 Hz). La courbe en vert, représente le signal de pression de l'eau dont la période d'oscillation est de cinq secondes (f = 0,2 Hz). Les signaux de pressions des deux pompes alimentant le micro-canal "300 - 600", sont des signaux qui se retrouvent aux deux entrées du micro-canal "300 - 600".

Ces signaux bruts affichés sur la figure 29 ont subi un traitement du signal. La technique employée est la densité spectrale de puissance croisée de l'anglais Cross-Spectral Density. D'après [cygres] [1], la Fonction de densité spectrale de puissance (PSD) est un outil mathématique indiquant l'intensité des variations d'énergie (généralement représentée en décibels, "dB") en fonction de la fréquence (Hertz). En d'autres termes, il permet d'observer si le signal présente des niveaux d'énergie caractéristiques et pour quelles fréquences les variations sont fortes ou faibles.

[Knob et J.-L., 1977] définit une densité spectrale de puissance croisée comme suit : une densité spectrale de puissance croisée $\gamma_{yx}(\nu)$ (ou fonction spectrale d'intercorrélation) de deux fonctions aléatoires X(t) et Y(t) stationnaires et ergodiques à l'ordre deux est, d'après le théorème de Wiener-Kintchine, la transformée de Fourier (TF) de la fonction d'intercorrélation :

$$\gamma_{xy}(\nu) = TF(\Gamma_{xy}(\tau)) \tag{6}$$

[1] http ://www.cygres.com/OcnPageE/Glosry/SpecE.html

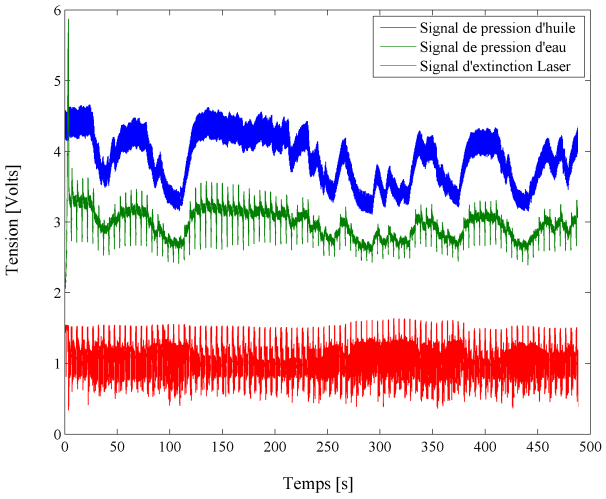


FIG. 29: Signaux bruts acquis sous fréquence 10 kHz.

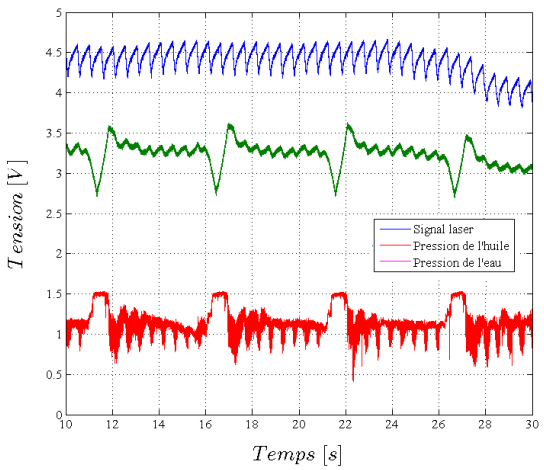


FIG. 30: Portion des signaux présentés précédemment.

On peut donc accéder à une estimation de la DSPC $\hat{\gamma}_{xy}(\nu)$ en prenant une transformée de Fourier d'une estimation de la fonction d'intercorrélation multipliée par une fonction de pondération

$$\hat{\gamma}_{xy}(\nu, F) = TF(\hat{\Gamma}_{xy}(\tau), F(\tau)) \tag{7}$$

(x et y sont deux réalisations particulières de X et Y de durée finie).

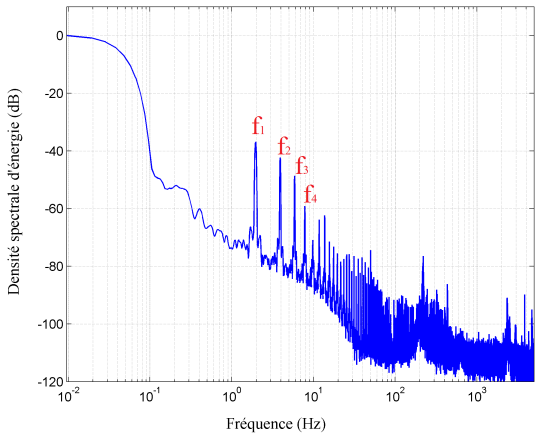


FIG. 31: D.S.P. croisée du signal de pression d'huile.

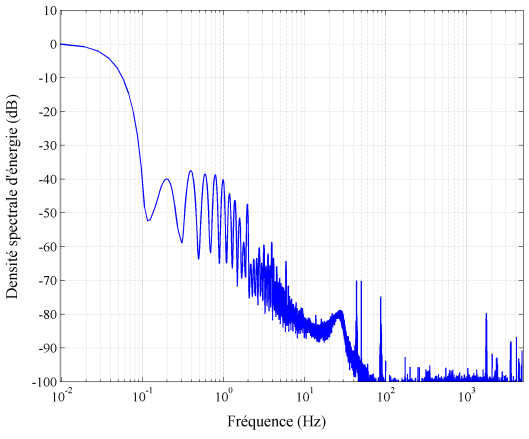


FIG. 32: D.S.P. croisée du signal de pression d'eau

.

Les signaux présentés sur les figures 31 et 32 ne sont pas exploitables en globalité car seules les parties d'un signal où la composante moyenne est stable dans le temps peut faire l'objet d'une analyse spectrale ; or cette longueur se révèle être limitante. En effet, sans rentrer dans

les détails de la méthode, la résolution du spectre dépend du nombre de données disponibles. En dépit du nombre de données initialement enregistrées pour chacun des signaux, la partie techniquement exploitable limite la résolution des spectres. Les composantes spectrales du signal de pression d'huile de tournesol sont affichées sur la figure 31. On distingue 4 pics dont la densité d'énergie se maintient supérieure à -60 dB à savoir : f_1 = 2 Hz, f_2 = 4 Hz, f_3 = 6 Hz et f_4 = 8 Hz. Il s'agit clairement de pics correspondant à la fréquence de fonctionnement des pistons (2 Hz) et aux harmoniques de cette fréquence. Par ailleurs, le niveau d'énergie de ce spectre est très faible. Il est peu probable que l'on puisse caractériser une structure typique de l'écoulement à partir de ce signal. On peut faire le même commentaire pour le signale de pression correspondant au flux d'eau injecté. On observe un pic à 0,2 Hz qui est la fréquence de fonctionnement des pistons dans la pompe à eau, ainsi que de nombreux pics correspondant aux harmoniques de cette fréquence. Quant au signal laser, le même constat peut être établi : on y observe les fréquences de fonctionnement des pompes et des pics pour les harmoniques, par ailleurs le niveau général d'énergie est très faible.

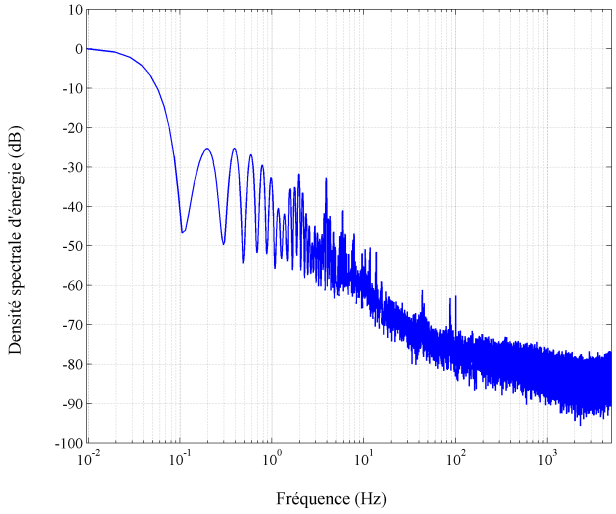


FIG. 33: D.S.P. croisée du signal d'extinction laser.

⚠

Cet essai c'est montré infructueux pour la simple raison qu'il a été impossible d'isoler une quelconque fréquence caractéristique du procédé de fractionnement. Les fréquences caractéristiques du pompage dominent le spectre des fréquences. Il faut savoir aussi que les énergies des autres signaux, pouvant donner des informations précieuses sur l'écoulement diphasique, sont trop faibles pour une exploitation fiable pouvant donner accès à des informations sur l'écoulement diphasique.

Étude expérimentale du fractionnement liquide-liquide en micro-canaux pour la production en continu de biodiesels émulsionnés.

Résumé :

Cette thèse s'intéresse à un procédé d'émulsification d'eau dans l'huile pour produire un biodiesel. En effet, dans la composition d'un biocarburant émulsionné, la présence d'une faible fraction d'eau sous forme de gouttelettes de l'ordre de 5 μm de diamètre est essentielle pour la réduction de polluants issus de leur combustion grâce au phénomène de micro-explosion. Pour ce faire, un système est développé et permet de traiter des débits de 60-100 mL/min pour alimenter des chaudières d'une puissance $\leqslant$ 60 kW. Le procédé développé ici emploi un système d'échelle sub-millimétrique basé sur le principe des jets en impact. Il s'agit d'un micro-système dont les canaux gravés forment une croix. Afin de générer un choc frontal de puissance suffisante entre les flux entrants des deux phases, différentes géométries ont été testées et discutées. Cette étude est menée selon le principe d'une maquette froide. Les fluides de travail choisis sont l'huile de tournesol (phase continue) et l'eau (phase dispersée). Des émulsions polydispersées sont obtenues contenant un volume d'eau < 20 % pour un diamètre moyen de dispersion de 10 μm. Les nombres capillaires appliqués (Ca = 4 - 12) sont 10 à 10^3 fois supérieurs à ceux investigués dans la littérature. Pour les vitesses d'écoulement mises en jeu, l'utilisation de la visualisation à haute fréquence (caméra rapide) et la technique optique de collecte de lumière polarisée ont permis respectivement une caractérisation de l'hydrodynamique d'écoulement liquide-liquide et la détermination de la zone active de fractionnement dans ces micro-systèmes.

mots clés : émulsion eau dans huile (e/h), micro-canal, jets impactants, caméra rapide, lumière laser polarisée.

Experimental study of liquid-liquid fractionation in micro-channels for the continuous production of biodiesel emulsified.

Abstract :

This work focuses on the design of a process of emulsification of water in a lipid phase that may be used as biofuel. Indeed, in the composition of an emulsified biofuel, the presence of a small fraction of water in the form of droplets, with diameter about 5 μm, is essential for the pollutants reduction during combustion due to micro-explosion. The choice is made to develop a simple design system that can treat sufficiently high flow rates (60 to 100 mL/min) in order to feed boilers with capacity $\leqslant$ 60 kW. The process investigated here to form water-in-oil emulsions (w/o) is a sub-millimeter scale system based on the principle of jets impact or so called impinging flow. This is a micro-system, in which engraved channels form a cross. To generate a frontal impact of sufficient power between the two phases inflows, different geometries were tested and discussed. This study was conducted according to the principle of a cold model. Selected working fluids are sunflower oil as the continuous phase and water as a dispersed phase. The emulsions obtained are polydisperse and contain less than 20 % by volume of water for an average dispersion diameter of 10 μm. Applied capillary number (Ca = 4 - 12) is 10 to 1000 times higher than those usually investigated in the literature. For these corresponding flow rates, the use of high speed camera and collecting polarized light technique enabled respectively a characterization of hydrodynamic liquid-liquid flow and the determination of the active area of fractionation in these microsystems.

Key words : water in oil emulsion (w/o), micro-channel, impinging flow, high speed camera, polarized laser light.