



HAL
open science

DYNAMIQUE DES BULLES DANS UN MICROREACTEUR

Nicolas Dietrich, S. Poncin, Huai-Zhi Li

► **To cite this version:**

Nicolas Dietrich, S. Poncin, Huai-Zhi Li. DYNAMIQUE DES BULLES DANS UN MICROREACTEUR. GLS07, 2007, Carry-le-rouet, France. 7p. hal-00366039

HAL Id: hal-00366039

<https://hal.science/hal-00366039>

Submitted on 5 Mar 2009

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

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

DYNAMIQUE DES BULLES DANS UN MICROREACTEUR

N. DIETRICH, S. PONCIN, H.-Z. LI

Laboratoire des Sciences du Génie Chimique, 1, rue Grandville, 54000 Nancy Cedex, France.
e-mail : Nicolas.Dietrich@ensic.inpl-nancy.fr

Résumé. Depuis quelques années, avec l'avènement des micros technologies, des procédés diphasiques à petites échelles se développent de plus en plus, allant du millimètre à une centaine de micromètres, conduisant à l'émergence de micro-réacteurs diphasiques gaz-liquide. Notre travail visera à combler le manque d'études en matière de quantification de champs de vitesse à l'échelle réduite pour accéder à des informations locales sur l'état de contraintes autour d'une bulle. L'objectif de notre travail consiste donc dans l'investigation des champs de vitesse au sein d'un microréacteur transparent pour des systèmes diphasiques gaz-liquide dans le but de comprendre le mécanisme de formation des bulles.

Mots Clés. PIV, microfluidique, microbulles, microréacteur

INTRODUCTION

Les écoulements autour d'une inclusion (bulle – goutte - solide) en milieu newtonien et non newtonien interviennent dans de nombreux procédés industriels. Parmi ces procédés nous citerons la dévolatilisation de polymères et de graisses, le craquage du pétrole, le traitement des eaux, la colonne à bulles, le fermenteur aéré, l'émulsification, les bioprocédés, l'agroalimentaire, la sidérurgie, etc. Ces systèmes sont généralement le siège de transferts de chaleur et de matière, le plus souvent accompagnés de réactions chimiques. Dans ce contexte, l'efficacité de ces transferts et transformations constitue un enjeu primordial qui dépend en premier lieu de la maîtrise des phénomènes interfaciaux entre les phases présentes dans ces systèmes car de nombreuses opérations en Génie des Procédés ont besoin de mettre en contact plusieurs fluides, soit directement pour favoriser la réaction chimique ou le transfert de matière, soit indirectement pour favoriser le transfert de chaleur. Ces échanges ont lieu aux interfaces entre ces fluides. Ils sont donc d'autant plus importants que surface d'échange ($S_{\text{transferts}}$) est grande par unité de volume considérée (V_{fluides}). L'objectif est donc d'avoir un rapport $S_{\text{transferts}} / V_{\text{fluides}}$ aussi grand que possible. Soit L l'échelle de longueur à laquelle les échanges interviennent. Le terme $S_{\text{transferts}}$ étant proportionnel à L^2 tandis que le terme V_{fluides} étant proportionnel à L^3 , le rapport $S_{\text{transferts}} / V_{\text{fluides}}$ est donc proportionnel à $1/L$. L'intérêt de travailler à des dimensions petites est clair : plus L est petit, et plus le rapport $S_{\text{transferts}} / V_{\text{fluides}}$ est grand rendant le transfert aux interfaces le plus grand possible.

Cependant, dans l'ensemble, nos connaissances sont encore largement limitées à une description assez globale à l'échelle macroscopique et l'étude à de si petites tailles n'est pas si évidente. En effet, à ces échelles, les effets capillaires et visqueux sont prédominants et les écoulements sont généralement laminaires. A titre de remarque, on peut se demander si à des échelles aussi petites, l'approche de la mécanique des milieux continus reste valable. Rappelons que cette approche est valide tant que le nombre de Knudsen est très petit devant un. Le nombre de Knudsen est un nombre adimensionnel permettant de déterminer le régime d'écoulement (en terme de continuité du milieu et non en terme de turbulence) d'un fluide, défini par le rapport d'une longueur λ caractérisant les phénomènes microscopiques et d'une longueur L caractérisant les phénomènes macroscopiques. La validité des équations de Navier-Stokes est mise en défaut pour un nombre de Knudsen dépassant 0,001. Dans le cas d'un écoulement diphasique dont l'un des fluides est un gaz (l'air) dans un canal de 500 micromètres de diamètre, on peut prendre λ égal au libre parcours moyen de l'air ($\lambda \approx 1,8 \cdot 10^{-7}$ m) et on choisit $L = 500 \cdot 10^{-6}$ m. Il vient un nombre de Knudsen de 0,00036 qui est très inférieur à l'unité. Nous sommes donc bien dans le cadre de validité de l'approche des milieux continus. Certaines réactions en milieu diphasique sont très dangereuses et difficilement réalisable à grande échelle en raison de la toxicité ou du coût élevé des produits qu'elles consomment, il est donc intéressant d'avoir des quantités de produits les plus faibles possibles. C'est pourquoi, pour toutes ces raisons, de nombreux travaux se sont tournés ces dernières décennies vers les écoulements diphasiques évoluant dans des conduites millimétriques et plus récemment micrométriques. Ainsi de nombreuses études [1,2,3] portent sur l'application de ces procédés à des échelles plus petites, allant du millimètre à une centaine de micromètres, amenant à l'émergence de micro-réacteurs diphasiques gaz-liquide.

Dans le passé, plusieurs études [2,3] ont porté sur certains aspects de ces écoulements, particulièrement la mesure de la taille de bulles ou de gouttes en fonction de la géométrie. Mais il y a encore très peu d'étude [4] sur la quantification de champs de vitesse à l'échelle réduite pour accéder à des informations locales sur l'état de contraintes autour d'une bulle. L'objectif de notre travail consiste donc dans l'investigation des champs de vitesse au sein d'un microréacteur transparent pour des systèmes diphasiques gaz-liquide dans le but de comprendre le mécanisme de formation des bulles afin de valider la simulation numérique, en particulier l'approche Lattice Boltzmann (LB) développée depuis quelques années dans notre équipe.

MONTAGES EXPERIMENTAUX

Le micro-mélangeur utilisé pour notre étude est un micro mélangeur fabriqué par Dantec Dynamics, composé d'une section en Y et de 5 rétrécissements (Figure 1). Les canaux ont une section circulaire de 800 μm au niveau du Y et de 600 μm au niveau des canaux. Afin d'obtenir des champs de vitesse pour comprendre les mécanismes de formation de micro-bulles, il est important que le micro-mélangeur soit transparent.

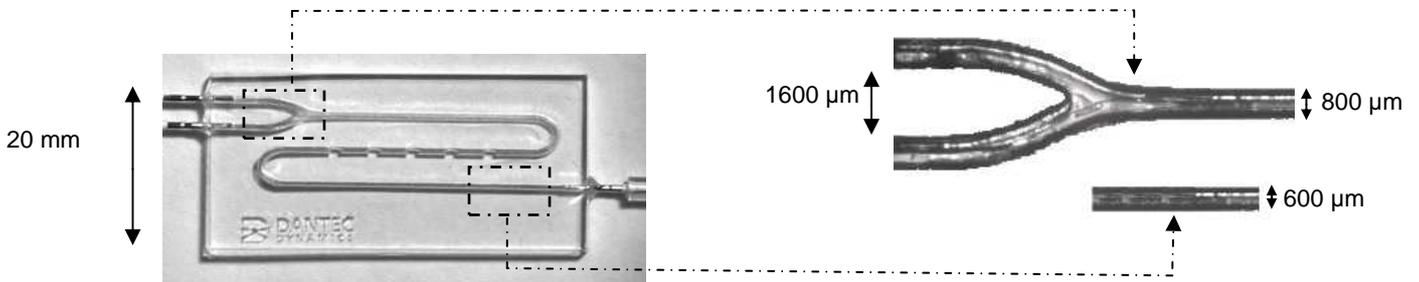


Fig 1. Micro mélangeur étudié et agrandissement des sections étudiées à droite.

La vélocimétrie par images de particules (PIV) est une technique optique non intrusive permettant d'évaluer un champ instantané de vitesses en fonction du temps dans un plan de l'écoulement étudié. Cette aptitude à accéder à la répartition spatiale du vecteur vitesse en fait une technique de vélocimétrie complémentaire aux techniques déjà existantes telle que LDV (Vélocimétrie Laser à effet Doppler) par exemple. Elle a fait son apparition dans le monde scientifique depuis une quinzaine d'années, notamment en mécanique des fluides et en génie des procédés dans les études des écoulements de gaz, de liquide et gaz/liquide. La vélocimétrie par images de particules est basée sur le suivi de particules jouant le rôle de traceurs et entraînées par le fluide pour mesurer la vitesse. Toutefois, plutôt que de concentrer la lumière dans un petit volume de mesure (comme dans le cas de la LDV), une section de l'écoulement est illuminée. Cet éclairage est produit à l'aide de nappes laser lumineuses très minces ou, comme dans notre cas, par un micro stroboscope permettant d'illuminer les particules utilisées comme traceurs selon que celles-ci soient fluorescentes ou non, afin de les localiser à des instants successifs à l'aide d'une caméra.

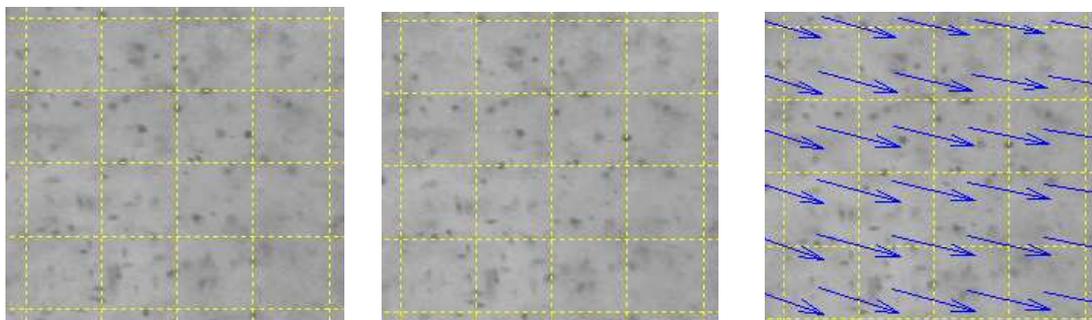


Fig 2. Principe de la micro-vélocimétrie par image particulaire (μPIV)

Le déplacement local de chacune des particules dans le fluide donne accès à un vecteur instantané de vitesse. En considérant, le déplacement de plusieurs particules, on accède alors au champ instantané des vitesses (Figure 2). Le principe de base de la PIV est donc simple : la vitesse

instantanée d'un fluide est mesurée par la détermination des déplacements de traceurs illuminés par une nappe laser. La Vélocimétrie par Image de Particules (PIV) est un outil puissant qui cartographie l'écoulement dans les microstructures et fournit une validation aux simulations. La technique de la PIV appliquée à la micro-fluidique est souvent appelée Micro PIV.

On utilisera pour la visualisation microscopique, un système de μ -PIV (Particle Image Velocimetry) composé d'un microscope Leica[®] muni d'objectifs de grossissements de 10, 40 et 63, d'un micro-strobe de longueur d'onde émise de 530 nm qui permet d'éclairer le micro mélangeur, d'une caméra d'une résolution de 2048x2048 Flowsense Dantec[®] de 15 Hz qui permet une acquisition pouvant aller jusqu'à 7 paires d'images par seconde sur 8 niveau de gris. Le processeur permet de synchroniser la prise d'image sur le flash du stroboscope, la durée de ce flash, ainsi que le temps séparant deux prises d'images consécutives. Le logiciel de traitement (Flow Manager version 4.6) divise les images en milliers de petites aires d'intégration de 32x32 pixels. Une corrélation croisée est effectuée et permet le calcul des champs de vecteurs vitesses. La profondeur de champ (i.e. où les particules visualisées seront nettes), est comprise entre 10 et 40 μm , ce qui fait qu'une mesure effectuée n'est pas faite sur un plan mais sur une tranche du micromélangeur. Toutefois cette valeur est négligeable en comparaison de l'épaisseur du microcanal. Afin d'obtenir des champs de vecteurs vitesses précis, les particules traçantes doivent suivre l'écoulement parfaitement. L'ensemencement doit être uniforme et à une concentration raisonnable pour suivre au mieux l'écoulement. Dans ce but la masse volumique et la viscosité doivent être voisines de celles du fluide étudié (inertie négligée). Si le traceur utilisé est constitué de particules trop petites, il peut advenir une erreur relative dû au mouvement brownien (Robert Brown, 1927,[5]). Ce mouvement aléatoire des particules établit une limite inférieure à la réalisation de μ PIV. A partir de l'équation d'Einstein-Sutherland [6] (1905), on peut estimer l'influence de ce mouvement brownien. L'équation (1) établit la relation entre le coefficient de diffusion d'un colloïde D (rapport entre l'agitation thermique et forces visqueuses) et les propriétés du colloïde.

$$D = \frac{kT}{6\pi\eta R} \quad (1)$$

R est la constante des gaz parfaits, T la température, η la viscosité du fluide, r le rayon de la particule et k la constante de Boltzmann. Plus le rayon de la particule est faible plus le mouvement brownien sera grand. L'écart type du déplacement aléatoire d'une particule est donné par l'équation (2).

$$\sigma_p = \Delta x_p \approx \sqrt{2D\delta t} \quad (2)$$

Ainsi, à 4Hz, pour le déplacement d'une particule de 200nm de diamètre, le déplacement aléatoire est estimé à 3 $\mu\text{m/s}$. Or la vitesse des écoulements étudiés étant de l'ordre de quelques millimètres par secondes, cela constitue une erreur de plusieurs pourcents sur la vitesse. Il faut donc privilégier des particules plus grosses pour éviter les problèmes dus au mouvement brownien. Cependant plus la particule est grosse et plus elle risque de sédimenter. La vitesse de sédimentation d'une particule de diamètre d est atteinte lorsque la force de résistance visqueuse équilibre son poids on obtient alors l'expression (3).

$$V_s = \frac{d^2(\rho_g - \rho_p)}{18\mu} \quad (3)$$

Pour des particules traçantes de 5 μm , la valeur de la vitesse de sédimentation devient alors de l'ordre de 1,5 $\mu\text{m/s}$. Les vitesses minimales mesurées étant de l'ordre d'une centaine de $\mu\text{m/s}$, il faut contenir la contribution de ses deux phénomènes à moins de 1 % pour s'assurer de maîtriser au mieux ces deux phénomènes. La figure 3 représente les vitesses dues à ces deux effets (brownien et sédimentation), ainsi que la somme de ces deux effets. Ainsi la taille optimale pour minimiser ces deux effets est de 2 μm , de plus, pour s'assurer d'avoir des résultats précis à 0,5% sur des vitesses minimales mesurées de l'ordre de 400 $\mu\text{m/s}$, il faudra limiter ces vitesses à 2 $\mu\text{m/s}$. Ce qui permet de travailler avec des particules comprises entre 0,5 et 5 μm . C'est la taille de la géométrie, des fenêtres de visualisation et des objectifs qui va permettre d'affiner la valeur du diamètre des particules.

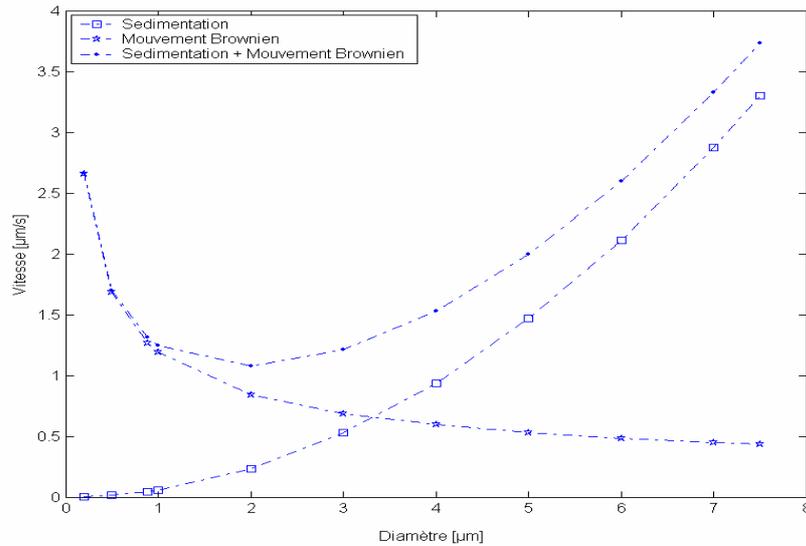


Fig 3. Influence de la vitesse de sédimentation et du mouvement Brownien sur l'écoulement.

En l'occurrence, pour travailler avec un grandissement de 100, dans une conduite de 800μm, notre choix s'est porté sur des particules de latex ($d=0,88 \mu\text{m}$ et masse volumique= $1,056 \text{ g/l}$). La formation des bulles est réalisée dans un mélange eau/SDS. Le tensioactif utilisé est du Sodium Dodecyl Sulfate (SDS), à hauteur de 3%, permet de diminuer la tension superficielle (38.23 mN.m^{-1}) entre l'air et l'eau. Les autres propriétés physicochimiques de l'eau ne sont pas changées. Toutes les expériences ont été réalisées à la température constante de 293 K.

RESULTATS

Pour valider la mesure des champs de vitesse obtenus par micro-PIV, une étude en monophasique est nécessaire. Pour ce faire, nous allons comparer la vitesse obtenue avec le profil de vitesse théorique. Les champs de vitesses, qui sont obtenus pour une valeur de 200 μs entre chaque image et de 140 ms entre chaque paire d'images, sont représentés sur la figure (4).

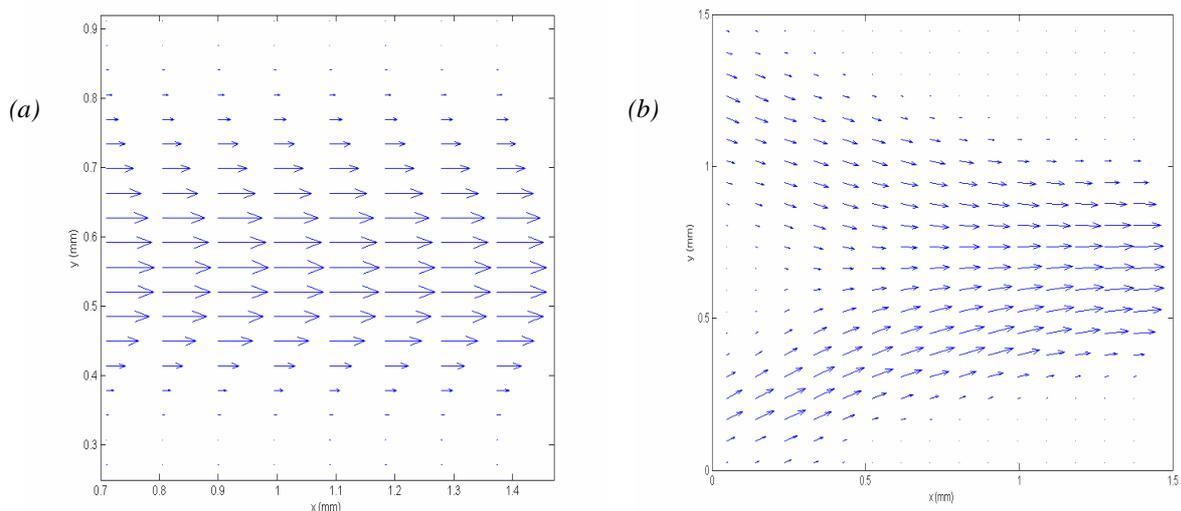


Fig 4. Champs de vecteurs vitesse (a) dans un canal ($D=7,06 \cdot 10^{-9} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$) de 600μm de diamètre (b) dans une section Y ($D_{\text{total}}=1,83 \cdot 10^{-8} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$) de 800μm de diamètre

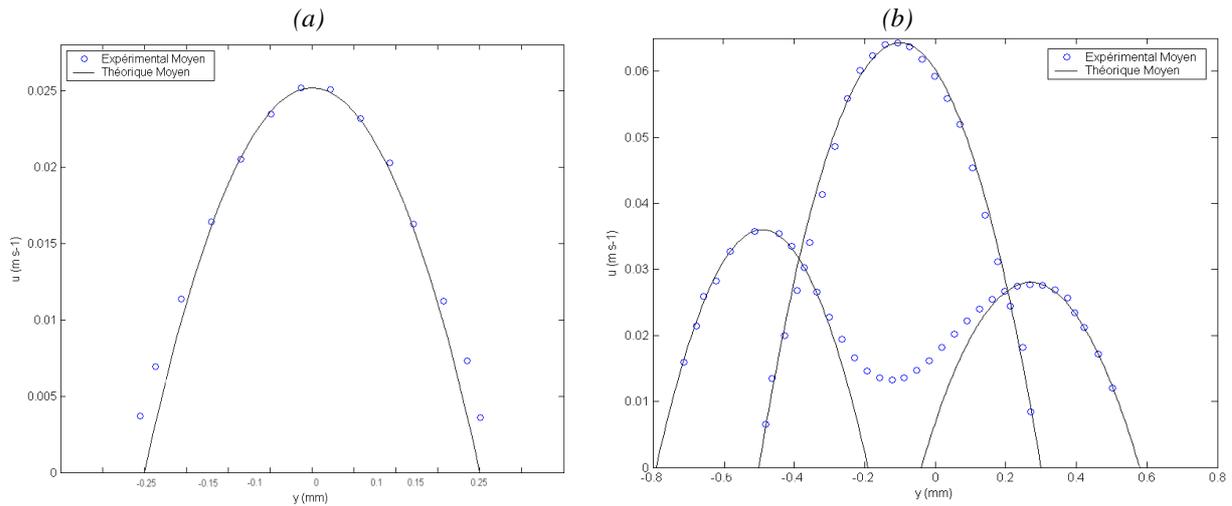


Fig 5. Comparaison des profils théoriques et expérimentaux (a) dans un canal ($D = 7,06 \cdot 10^{-9} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$) de $600 \mu\text{m}$ de diamètre (b) dans une section Y ($D_{\text{total}} = 1,83 \cdot 10^{-8} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$) de $800 \mu\text{m}$ de diamètre.

Le profil de vitesse dans le canal est moyenné sur une section et représenté sur la figure (5a). Le profil ainsi tracé est parabolique dans cette section circulaire. Pour le profil dans la section-Y, on représente sur la figure (5b) la superposition des profils de vitesse en entrée et en sortie du Y.

Ceux ci sont aussi paraboliques et la somme des vitesses aux deux branches d'entrées est égale à la valeur de la vitesse de la sortie. Les nombres de Reynolds valent 15 et 52 pour des débits valant respectivement $7,06 \cdot 10^{-9} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ et $1,83 \cdot 10^{-8} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$, ce qui correspond à des écoulements de type laminaires. Le profil de vitesse théorique est tracé en superposition des valeurs expérimentales sur les figures (5a) et (5b) grâce à la formule (4).

$$v(r) = v_{\text{max}} \left(1 - \frac{r^2}{R^2} \right) \quad (4)$$

Cette superposition souligne un grand accord entre le profil expérimental et théorique au centre du canal mais un léger écart apparaît sur les bords. Cet écart peut être expliqué par la profondeur de champ qui empêcherait de mesurer une valeur nulle au paroi car il est très dur de mesurer le seul déplacement de ces particules sans mesurer celui des particules situé au proche voisinage. Néanmoins cette étude en écoulement monophasique permet de valider la mesure de champs de vitesse nécessaire pour homologuer l'étude des écoulements diphasiques gaz-liquide.

Les études microfluidique pour un écoulement diphasique sont encore trop restreintes et la plupart se contentent d'étudier l'écoulement d'une bulle dans une micro conduite. Nous nous proposons ici d'étudier la formation d'une bulle de longueur $1230 \mu\text{m}$ et de $1,24 \cdot 10^{-9} \text{ m}^3$ pour un débit de phase aqueuse de $1,08 \cdot 10^{-8} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ ($Re = 17$). Les champs de vitesse mesurés sont représentés sur la figure (6).

La formation de la bulle se fait en plusieurs étapes, la première est une expansion radiale (similaire à la formation dans un orifice millimétrique), puis lorsque la bulle atteint une taille critique, elle entame alors un mouvement d'élongation sous l'action des contraintes de cisaillement tout en continuant à s'accroître. A ce stade, la bulle connaît, simultanément, une phase d'expansion et une phase d'élongation. La formation s'achève lorsque la bulle se détache sous la force exercée par l'eau qui cisaille le film d'air allongé. Les champs de vitesses permettent de mettre en évidence la présence de ces contraintes de cisaillement latérale à la bulle. Plus le débit est grand et plus la taille critique de la bulle diminue et ainsi la phase d'élongation devient prépondérante sur l'autre phase.

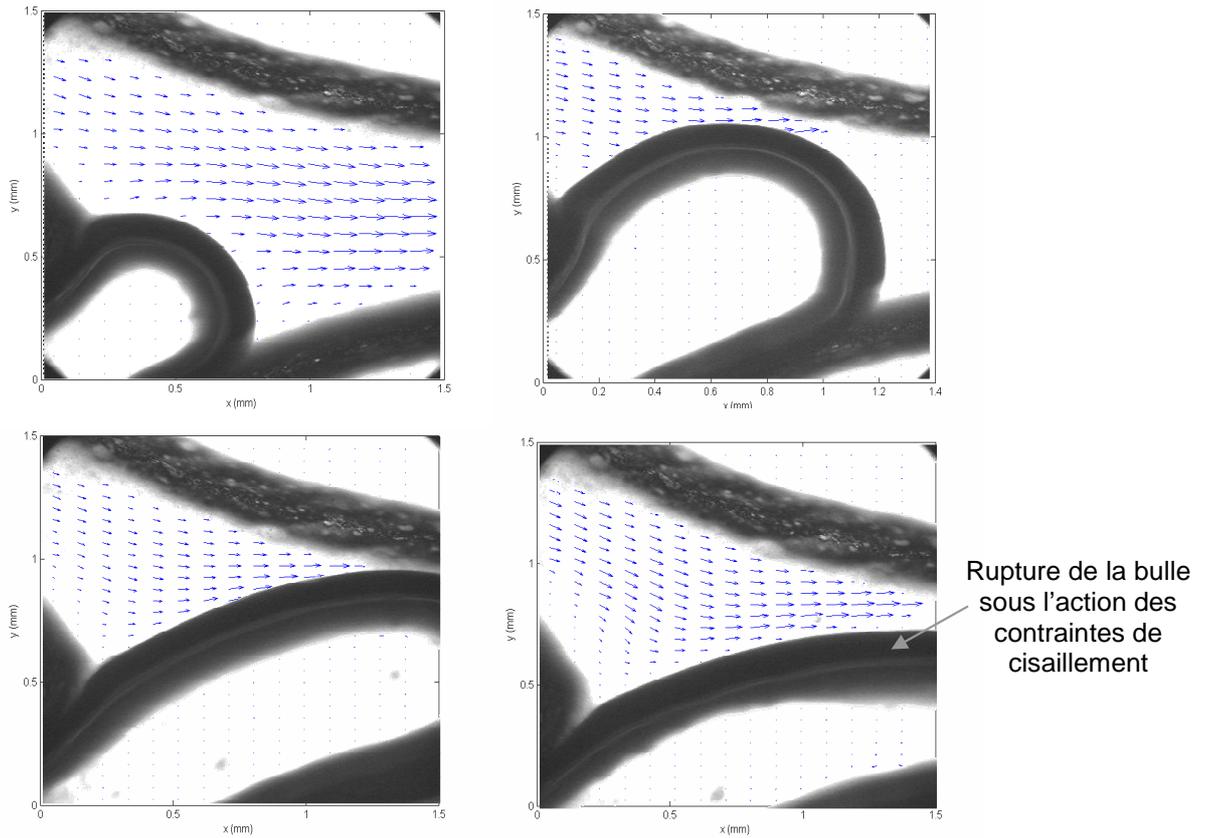


Fig 6. Champs de vitesse a la formation d'une bulle dans une section de type Y de 800 μ m de section. Volume de la bulle de 1,24 mm³. $1,08 \cdot 10^8 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$. $Re = 17$.

Pour compléter cette étude, l'écoulement de cette bulle dans une conduite de section de 600 μ m a été effectué. La figure (7) donne le champ de vitesse dans le sillage de la bulle. On observe un film entre la bulle et la paroi se déplaçant dans le sens inverse de la bulle. De plus, on note la présence de vortex de recirculation dans le sillage de la bulle engendré par le sillage positif de la bulle et la couche mince de liquide se déplaçant dans l'autre sens.

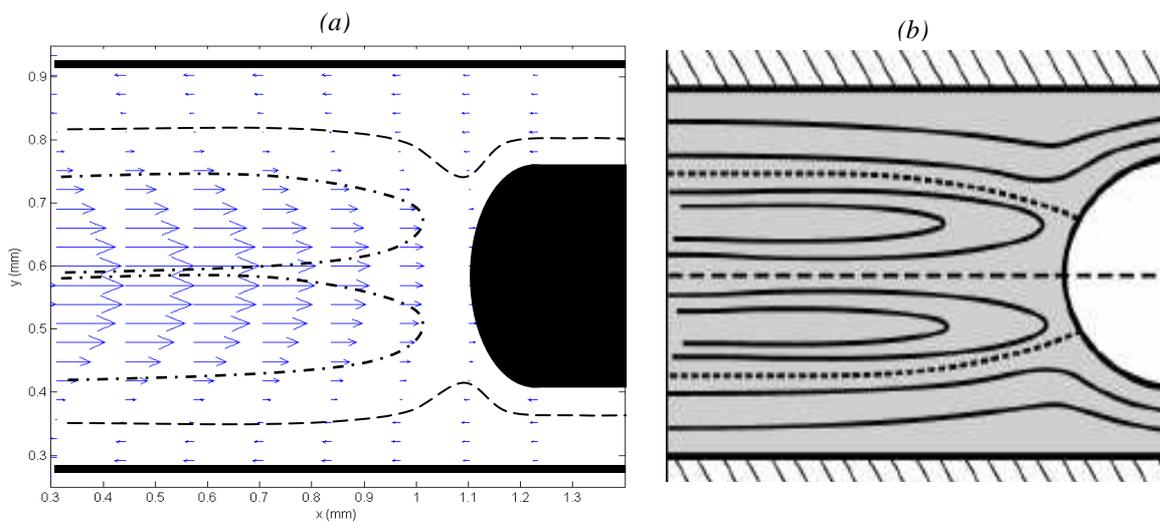


Fig. 7 (a) Champs de vitesse expérimentaux dans le sillage d'une bulle dans une section de 600 μ m. (b) Schéma prédictif des lignes de courant dans le sillage d'une bulle (Taylor, 1961)

Ces résultats sont en accord avec ceux prédits par Taylor en 1961 [7], concernant la présence de boucles de recirculation dans le sillage de la bulle. Cox (1961) [8] l'avait confirmé visuellement et Günther *et al.* (2004) [4], par vélocimétrie laser. La figure (9) représente le profil de vitesse dans une section du sillage confirmant la présence de ces vortex.

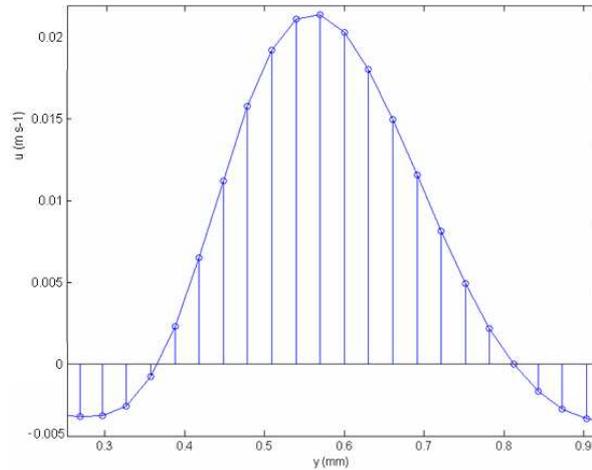


Fig 9. Profil de vitesse dans le sillage d'une bulle dans un canal de 600 μm

CONCLUSION

Ce présent travail permet la validation expérimentale de la mesure de champs de vitesse par μPIV . En écoulement monophasique, les résultats sont en bon accord avec les prédictions théoriques calculées à partir du modèle laminaire. En présence d'air, on observe la formation de micro-bulles, et on peut observer le mécanisme de formation de celle-ci grâce à la représentation des vecteurs vitesse obtenus par micro-PIV. Ainsi un mécanisme de formation des bulles a pu être proposé pour la formation dans une section de type-Y et pour l'écoulement dans un canal rectiligne, des résultats de la littérature ont pu être confirmés. Toutes ses informations nous seront utiles afin de valider la simulation numérique, en particulier par l'approche Lattice Boltzmann (LB) développée depuis quelques années dans notre équipe, pour la formation ou la coalescence des bulles.

REFERENCES

- [1] BRETHERTON F.P., The motion of long bubbles in tubes, *J. Fluid. Mech.*, 10, 166-188, (1961)
- [2] VAN BATTEN J.M et KRISHNA R., CFD simulations of mass transfer from bubbles rising in circular capillaries, *Chem. Eng. Sci.*, 59, 2535-2545, (2004)
- [3] GARSTECKI P., FUERSTMAN M.J., STONE H.A. and WHITESIDES G.M., Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T-junction – scaling and mechanism of break up, *Lab on chip*, 6, 437-446, (2006)
- [4] GÜNTHER A., KHAN S.A, THALMANN M., TRACHSEL F. and JENSEN K.F., Transport and reaction in microscale segmented gas liquid flow, *Lab on a Chip* 4 (2004), pp. 278–286.
- [5] BROWN R., *Edinburgh New Phil. J.* , 358 (1828) ; *Ann. Sci. Naturelles*, (Paris) 14, 341 (1828) ; *Phil. Mag.* 4, 161 (1828) ; *Ann. d. Phys. u. Chem.* 14, 294, (1828).
- [6] EINSTEIN A., *Ann. d. Physik* 17, 549-560 (1905) (également démontré par W. Sutherland, *Phil. Mag.* 9, 781, (1905).
- [7] TAYLOR G.I., Deposition of a viscous fluid on the wall of a tube, *Journal of Fluid Mechanics*, pp. 161–165. Full Text via CrossRef, (1961)
- [8] COX B.G., On driving a viscous fluid out of a tube, *Journal of Fluid Mechanics* 14, pp. 81–96, (1963)