

Intensification des transferts de chaleur et de masse pour la micro explosion optimale et les procédés en mini-canaux

Dominique Tarlet

► To cite this version:

Dominique Tarlet. Intensification des transferts de chaleur et de masse pour la micro explosion optimale et les procédés en mini-canaux. Milieux fluides et réactifs. Nantes Université, 2024. tel-04564474

HAL Id: tel-04564474 https://hal.science/tel-04564474

Submitted on 30 Apr 2024

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.

NantesUniversité

HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES HDR

NANTES UNIVERSITE

Spécialité : 62. Energétique, génie des procédés

Par Dominique TARLET

Intensification des transferts de chaleur et de masse pour la micro explosion optimale et les procédés en mini-canaux

Travaux présentés et soutenus à Nantes Université, le 16 janvier 2024 Unité de recherche : Laboratoire de Thermique et Energie de Nantes - LTeN UMR CNRS 6607

Composition du Jury :

Président :	Guillaume Castanet	DR CNRS – Université de Lorraine – LEMTA UMR 7563
Examinateurs :	Jérôme Bellettre Jocelyn Bonjour Lingai Luo	Professeur – Nantes Université – LTeN UMR 6607 Professeur – INSA Lyon – CETHIL UMR 5008 DR CNRS – Nantes Université – LTeN UMR 6607

Rapporteurs :

Joëlle AUBIN Alexandre LABERGUE François-Xavier DEMOULIN DR CNRS – Université de Toulouse – Lab. Génie Chimique de Toulouse Maître de Conférences – Université de Lorraine – LEMTA UMR 7563 Professeur – Université de Rouen – CORIA UMR 6614

<u>Résumé</u>

Ce mémoire de HDR présente nos travaux depuis 2009 portant sur l'intensification des transferts de chaleur et de masse aux interfaces liquide-liquide et gaz-liquide. Ce type d'intensification est nécessaire à la combustion en spray des combustibles liquides en émulsion, elle favorise le phénomène de micro-explosion qui la rend moins polluante. C'est pourquoi la généalogie des causes thermiques et mécaniques de la micro-explosion optimale en est le premier verrou scientifique, traité dans une première partie. Mais cette intensification améliore également l'émulsification préliminaire du combustible, à travers des micro-écoulements aux larges surfaces spécifiques; pour une variété d'autres applications la technologie multi-échelles y permet une émulsification plus orientée vers l'homogénéité. Enfin l'absorption chimique gazliquide dans les mini-canaux ouvre cette intensification à des applications de dépollution de plus en plus prisées, notamment d'absorption du CO_2 . Ce deuxième verrou scientifique est donc traité dans la seconde partie, relative aux micro-écoulements liquide-liquide (procédés d'émulsification et de mélange) et gaz-liquide. L'ensemble de ces travaux fut à dominante expérimentale. Cependant nous avons parfois fait appel à la simulation numérique, à de simples bilans d'énergie ou à des corrélations appropriées pour confronter la réalité mesurée aux explications offertes par le calcul théorique. Les perspectives futures de ces travaux sont également formulées, pour chacun de ces deux verrous scientifiques; ceci afin de progresser dans la compréhension et la maîtrise de ces transferts aux interfaces, s'appliquant à des procédés sûrs et performants au service du développement durable.

<u>Abstract</u>

This Habilitation thesis sums up our scientific campaign since 2009 about intensification of heat and mass transfer at liquid-liquid (emulsions, mixing processes) and gas-liquid interfaces. This kind of intensification is necessary to spray combustion of emulsified liquid fuels, because it favors the micro-explosion phenomenon that makes it less polluting. That is why determination of the root thermal and mechanical causes of the optimal micro-explosion is the first main issue of the present thesis. Secondly, intensification of mass transfer is carried out in the emulsifying minichannel feeding the liquid fuel, which offers a large specific surface; for a variety of other applications multi-scale technology enables a more homogeneous-oriented emulsification. Gas-liquid absorption in mini-channels also applies intensification of mass transfer to environment-friendly applications, such as absorption of CO_2 . This second main issue is treated in the second part, dealing with liquid-liquid (emulsification process) and gas-liquid flows. All the work done is predominantly experimental. Nevertheless, we sometimes used numerical simulations, straightforward energy balances or appropriate correlations to confront real-world measurements to the explanations offered by theoretical results. Perspectives of these works are also detailed for each of these main issues in order to move ahead a better understanding and control of these transfers at fluid interfaces, applied to reliable and efficient processes in the service of sustainable development.

Mots-clefs : Micro explosion, combustion diphasique (combustible liquide), microfluidique, mini-canaux, émulsion, émulsification, écoulement diphasique (liquideliquide et gaz-liquide), captage de CO_2 , absorption chimique du CO_2 , mélangeur, écoulement multi-échelles.

Table des matières

 $\mathbf{2}$

Table des matières $\mathbf{5}$ 7 Introduction générale 1 7 1 $\mathbf{2}$ 7 3 9 3.111 3.2124 Intensification de l'émulsification, du mélange et de l'absorption gaz-134.1 Émulsification à haute vitesse débitante 144.2Intensification du mélange et de l'émulsification dans les géo-17Absorption chimique du CO_2 en mini-canal $\ldots \ldots \ldots \ldots$ 4.3194.4205Contenu et organisation du mémoire 20 $\mathbf{2}$ Vers la micro-explosion optimale $\mathbf{23}$ 231 2232.1232.2253 À l'extérieur de la goutte d'émulsion (2012-2016) 263.1Distribution d'énergie thermique des gouttes-filles 273.2Répartition de l'énergie mécanique des gouttes-filles 30 3.3 Impact de la coalescence de l'eau interne 313.4Enseignements retenus de l'extérieur de la goutte 344 À l'intérieur de la goutte d'émulsion (2016-2023) 36 4.136 4.2434.3Résumé des principales tendances observées 475476 48 Intensification de l'émulsification, du mélange et de l'absorption 3 gaz-liquide en mini-canal 511 51

51

	3	Écoulements multi-échelles	53		
		3.1 Émulsification	54		
		3.2 Mélangeur liquide-liquide	57		
	4	Émulsification à haute vitesse débitante	61		
	5	Absorption chimique du CO_2 en mini-canal	66		
	6	Conclusion et perspectives	68		
4	Con	Conclusions et perspectives			
	1	Nos principales avancées en quelques mots	69		
	2	Envisager l'avenir	69		
		2.1 Micro explosion de la goutte d'émulsion	70		
		2.2 Intensification des transferts dans les procédés en mini-canaux	71		
	3	Bibliométrie personnelle	72		
	4	Activités d'enseignement	79		
	5	Curriculum vitæ	80		
	6	Le mot de la fin	87		
Bi	Bibliographie				

Bibliographie

Chapitre 1 Introduction générale

1 Synopsis

Ce chapitre d'introduction générale commence par définir le sujet des travaux de recherche exposés ici, par en délimiter les contours (à travers l'expression de problématiques scientifiques) pour finir par en préciser les objectifs que nous poursuivons et en quoi ceux-ci se distinguent des travaux publiés ailleurs. D'où une présentation succincte de certains travaux majeurs du domaine, identifiés comme tels dans la littérature scientifique. Le plan de ce mémoire découlera naturellement des axes de recherche choisis, afin d'exposer les travaux menés pour y répondre.

2 Méthodologie suivie

Ce mémoire de HDR concerne nos travaux menés depuis 2010 (début de ma carrière au Laboratoire de Thermique et d'Énergie de Nantes) sans s'interdire des références à des travaux antérieurs au cours de périodes d'apprentissages, notamment ma thèse de doctorat au Centre d'Énergies et de Procédés (CEP) de l'École des Mines de Paris¹ intitulée "Contribution à la micro-explosion des émulsions de l'eau dans l'huile". Tant au cours de cette thèse qu'à partir de mon stage post-doctoral à l'Université Otto-von-Guericke de Magdeburg (Allemagne), les travaux exposés sont des œuvres collectives².

Au cours de ma thèse je me suis bien sûr initié au domaine de la micro explosion, en plus des compétences quotidiennes de laboratoire (rédaction d'articles, bibliographie, plan d'expériences, démarches administratives et commandes de matériel, gestion collaborative de l'avancement du projet etc.) alors que ma période post-doctorale m'a fait développer davantage des compétences expérimentales liées à la mécanique des fluides (post-traitement et imagerie, coordination de stagiaires avec un doctorant etc.). Ensuite au LTeN le co-encadrement de huit doctorants, la rédaction de plusieurs propositions de projets, la réalisation de certaines expériences par moi-même et l'insertion dans l'axe Transferts dans les Fluides et les Systèmes

^{1.} soutenue le 5 avril 2008 à l'actuel IMT Atlantique.

^{2.} Je fais référence ici aux co-auteurs des publications et aux nombreuses personnes impliquées dans les ateliers techniques, la direction, l'administration et l'entretien des laboratoires, aux bailleurs et gestionnaires de fonds, aux collègues rencontrés lors des conférences françaises ou internationales, aux échanges d'idées qui font la vie universitaire.

Énergétiques (TFSE) m'ont incité à (i) poursuivre l'étude de la micro explosion et (ii) développer également **l'étude d'un domaine connexe en mini-canaux**, à savoir les procédés d'émulsification ou de mélange (liquide-liquide) puis de capture de CO_2 par absorption chimique (gaz-liquide).

C'est pourquoi ce mémoire porte sur l'intensification de transferts de chaleur et de masse, à travers l'expérimentation de la micro-explosion des gouttes d'émulsion de l'eau dans l'huile d'une part, et d'écoulements en mini-canaux liquideliquide (émulsions, mélange) ou gaz-liquide d'autre part. Dans nos laboratoires à dominante expérimentale, en l'état actuel de la métrologie nous quantifions aisément la performance globale (entrée / sortie) de ces procédés, tout en nous efforçant de détecter ce qui en est la cause à de plus petites échelles de temps ($\simeq 1ms$) et d'espace ($\simeq 5 \mu m$). Afin de confronter ces mesures à des explications théoriques, nous faisons parfois appel à de simples bilans d'énergie ou à des simulations numériques mises en œuvre par des partenaires spécialisés.

Voici comment nous allons introduire le contexte de ces travaux, qui contribue à définir la démarche mise en place :

- Que sont les procédés étudiés ici dans leurs contours, leur histoire, leurs particularités et leur intérêt sociétal ?
- En quoi l'intensification des transferts de chaleur et de masse est-elle cruciale dans leur optimisation concrète ?
- Quels axes de recherche choisissons-nous afin de progresser dans ce domaine ? En quoi sont-ils différents (ou complémentaires) des travaux menés par la communauté scientifique ? En quoi consistent la contribution apportée, les progrès effectués ?

Chacun de ces points fera ici l'objet d'une section spécifique, avant de présenter le plan général du mémoire tel qu'il résultera des réponses qui y seront apportées. Les procédés étudiés sont ici présentés ici à travers les principales caractéristiques qui les définissent, notamment **leurs verrous scientifiques** que la communauté s'efforce de résoudre³.

^{3.} ce qui se manifeste par des dizaines de publications récentes sur une même problématique.

3 La micro-explosion des émulsions (w/o)

La plus ancienne publication identifiée traitant de la micro-explosion remonte à 1962, en Union Soviétique [Ivanov and Nefedov, 1962]. Elle se produit dans une goutte de combustible liquide chauffée (considérée individuellement, cf. Fig. 1.2) en émulsion avec une part d'eau. Au départ, l'eau est dispersée en gouttelettes de l'ordre de $10 \,\mu m$. Grâce à son point d'ébullition plus bas, cette eau va se vaporiser avant le combustible qui l'environne; son expansion volumique va alors disloquer ce combustible. On notera le caractère soudain de cette vaporisation (observée sur moins d'une milliseconde [Dryer, 1976, Watanabe et al., 2010]) favorisant ce travail mécanique. À l'échelle d'un spray en combustion où se produisent des micro-explosions, on parlera de seconde atomisation⁴ [Watanabe et al., 2010].

L'intérêt de la seconde atomisation réside dans son grand bénéfice énergétique et environnemental, surtout vis-à-vis des polluants solides carbonés (suies et cénosphères unies sous le vocable de "particules" [Mattiello et al., 1992]) qui peuvent être diminués jusqu'à 90% [Sjogren, 1977]. La dislocation brutale de la goutte de combustible fragmente la coquille de résidu carboné qui était en train de s'y former par pyrolyse (Fig. 1.1) la rendant plus fragile, plus susceptible d'être brûlée avant la fin de la flamme. Plus généralement la seconde atomisation aide à brûler des combustibles visqueux, issus par exemple de la valorisation de déchets ou de co-produits industriels [Melo-Espinosa et al., 2015, Wang et al., 2019], en "soulageant" le brûleur d'une partie du travail nécessaire à pulvériser finement le combustible.



FIGURE 1.1 – Cénosphères issues de la combustion (A) de fuel pur, (B) de 25% d'émulsion de l'eau dans le fioul [Ocampo-Barrera et al., 2001].

[Law, 1977] en décrit plus précisément la phénoménologie, en rappelant que l'eau peut ne pas se vaporiser dès son point d'ébullition et atteindre un état liquide métastable dont la température est majorée par la limite spinodale (600 K pour l'eau [Law, 1977]), à laquelle la vaporisation se déclenche forcément. En outre, une

^{4.} La première étant bien sûr la constitution du spray à l'injecteur.

^{3.} LA MICRO-EXPLOSION DES ÉMULSIONS (W/O)



FIGURE 1.2 – Micro-explosion de deux gouttes d'émulsion de 2.3 et 3 mm de diamètre [Mura et al., 2010] : (A) $D_{32}(H_2O) = 4.7 \,\mu m$, (B) $D_{32}(H_2O) = 17.4 \,\mu m$. Elles subissent un effet Leidenfrost sur une plaque chauffée concave, qui fut réutilisée pour plusieurs études de ce manuscrit [Tarlet et al., 2014b, Tarlet et al., 2016a] avant d'être remplacée par une version plus performante.

gouttelette d'eau a davantage de probabilité d'atteindre un niveau élevé de métastabilité du fait de sa petite taille, de l'absence d'impuretés solides (sites de nucléation) de son enclavement dans l'hydrocarbure et de la rapidité du puissant transfert thermique qu'elle subit [Law, 1977]. Plus récemment, dans une intéressante étude numérique [Shinjo et al., 2014] compare les effets (notamment mécaniques) de la micro-explosion suivant la configuration initiale de la phase dispersée d'eau. Ces différents travaux de recherche sur la micro-explosion mettent rapidement en lumière son principal verrou technologique : vaincre la frontière des petites échelles de temps $(\leq 1 ms)$ et d'espace ($\simeq 5 \mu m$).

[Watanabe et al., 2010] formalisa la distinction entre "puffing" et micro-explosion que nous avons nous-mêmes souvent observée [Tarlet et al., 2016a, Melo-Espinosa et al., 2018, Moussa et al., 2020] : le premier consiste en une désintégration partielle de la goutte d'émulsion, avant d'autres désintégrations ultérieures ; la seconde en une désintégration soudaine ($\leq 1ms$), totale et fine de la goutte d'émulsion (accompagnée d'un bruit de claquement caractéristique) qui laisse derrière elle de nombreuses petites gouttes de combustibles, brûlant très rapidement et occasionnant moins de pollution.

Cette distinction nous aida à formuler **un taux de micro-explosion réussie** avec lequel quantifier le taux de réussite du procédé. En effet, en matière de combustion des combustibles liquides les transferts de chaleur et de matière, la chimie, l'écoulement gazeux concourent conjointement au résultat final; leur interconnexion nous oblige à vérifier la reproductibilité sur un grand nombre d'essais de goutte d'émulsion individuelle (comme celui Fig. 1.2) pour aboutir à un résultat crédible. À l'issue de la thèse d'Ernesto Mura soutenue en 2011 [Mura et al., 2010] où la goutte d'émulsion était chauffée par effet Leidenfrost, c'est dans cette optique que nous avons continué à nous focaliser sur la goutte individuelle d'émulsion.

3.1 Transferts de chaleur et de masse

Au sein de la goutte d'émulsion chauffée, les transferts de chaleur et de masse sont au cœur de la maturation puis de l'aboutissement des causes qui produisent la micro-explosion, a fortiori la micro-explosion réussie⁵:

- Transferts de chaleur : Des campagnes expérimentales sur des sprays en combustion sont pratiquées dans la littérature, souvent pour quantifier le bénéfice environnemental de la seconde atomisation [Sjogren, 1977] mais il demeure difficile de déterminer précisément la nature et l'intensité du transfert thermique que chaque goutte y subit. C'est ici qu'intervient "l'histoire thermique" de la goutte d'émulsion chauffée, qui se traduit par une intégrale tout au long du temps de chauffe, avec en particulier le suivi non intrusif de la température des gouttelettes internes d'eau par LIF 2-couleurs [Strizhak et al., 2020] ou le dispositif "Differential Scanning Calorimetry" (DSC) [Mura et al., 2012a, Tarlet et al., 2016b]. En tant qu'expérimentateurs, à l'heure de concevoir un banc d'essai pour une goutte individuelle d'émulsion, plusieurs choix s'offrent à nous concernant le mode de chauffage. Ainsi [Mura et al., 2014] compare les configurations "Leidenfrost" et "Suspended droplet", concluant que le niveau de métastabilité atteint est fondamentalement déterminé par le mode de transfert thermique choisi. [Avedisian, 1981] rappelle que des sites de nucléation, tels que des objets ou impuretés solides peuvent initier la nucléation hétérogène, celle qui prend naissance à une interface, par opposition à la nucléation homogène qui prend naissance dans un volume de liquide [Kadota and Yamasaki, 1982]. Cependant [Mura et al., 2014] conclut que l'impact d'un thermocouple inséré dans l'émulsion n'est pas déterminant à cet égard. L'approche "Drop tower" [Lasheras et al., 1979, Gollahalli, 1979] est plus proche d'un spray en combustion, surtout avec un écoulement gazeux ascendant à une température maîtrisée [Antonov et al., 2020a]. La température à laquelle survient la micro-explosion fut même mesurée pour des émulsions confinées dans des tubes capillaires [H. Yamasaki, 1992], ou à l'impact de la goutte d'émulsion sur une surface chauffée [Cen et al., 2019]. Pour étudier la micro-explosion, l'apport de chaleur dans ses modes conductif, convectif et radiatif ainsi que le caractère non-intrusif des mesures [Moussa et al., 2020] (vis-à-vis d'une éventuelle nucléation hétérogène) doivent être considérés attentivement par l'expérimentateur : De quelle manière pouvons-nous reproduire en laboratoire les conditions d'un spray en combustion? La conception du banc d'essai est une question loin d'être close, et fait l'objet d'études récentes [Antonov et al., 2020a]. Nous avons su évoluer à ce propos, d'une configuration Leidenfrost [Tarlet et al., 2014b] à du transfert radiatif [Thomas Naudin, 2023] pour imiter davantage le spray en combustion, et même en micro-gravité [Segawa et al., 2000, Chauveau et al., 2011].
- <u>Transferts de masse</u>: Au cours du chauffage de la goutte d'émulsion, [Segawa et al., 2000, Suzuki et al., 2011] observent la coalescence de la phase d'eau dispersée : celle-ci se réunit parfois jusqu'en une gouttelette unique (Fig. 1.3). [Suzuki et al., 2011] démontre que la probabilité d'une micro-explosion optimale est liée à une coalescence préliminaire de la phase dispersée de

^{5.} par opposition au "puffing".

^{3.} LA MICRO-EXPLOSION DES ÉMULSIONS (W/O)

l'émulsion, d'où l'attention que nous portons au devenir de celle-ci durant la période de chauffe [Moussa et al., 2020]. La coalescence étant bien sûr facilitée par un écart de pression de Laplace (la haute pression se "déversant" dans la plus basse), la dispersion des diamètres des gouttelettes d'eau ainsi que leur mobilité dans l'émulsion (quantifiée par leur nombre de Ohnesorge Oh) fit l'objet d'investigations spécifiques [Moussa et al., 2018] sur notre banc d'essai micro-explosion.



FIGURE 1.3 – Coalescence photographiée à l'intérieur d'une goutte d'émulsion de 2,5 mm de diamètre, en micro-gravité [Segawa et al., 2000] : l'aspect blanc laiteux de l'émulsion cède progressivement la place à une unique gouttelette interne d'eau.

3.2 Les axes de recherche choisis

Sur ce thème des combustibles liquides émulsionnés, nous travaillons à déterminer **la généalogie de la micro-explosion optimale** d'une goutte d'émulsion. Celle-ci s'inscrit dans une évolution temporelle depuis la constitution de la goutte d'émulsion et le début de son réchauffement, jusqu'à l'instant "couperet" de sa désintégration soudaine. Son réchauffement n'est pas forcément linéaire au cours du temps [Ocampo-Barrera et al., 2001], ni toujours identique, mais on considère son histoire thermique comme reproductible en la caractérisant sur de larges échantillons statistiques. En effet sa généralisation à un spray en combustion -autrement dit la seconde atomisation- est du plus haut intérêt énergétique et environnemental.

C'est pourquoi nous étudions la goutte d'émulsion individuelle dans des conditions qui reproduisent, autant que possible, un spray en combustion. Ceci reflète notre proximité avec l'application industrielle ultérieure. Sur notre banc d'essai (et même dans notre installation DSC) la goutte est maintenue dans son intégrité jusqu'à l'instant de sa désintégration, sans être par exemple confinée à l'intérieur d'un tube capillaire ou projetée sur une surface chauffée.

Dans cette perspective, les transferts de chaleur et de masse font l'objet d'une étude attentive à l'intérieur de la goutte d'émulsion. Par exemple : à l'approche du changement de phase des gouttelettes internes d'eau, nous n'hésitons pas à conjuguer simultanément les mesures de leur taille et de leur température pour calculer leur énergie [Moussa et al., 2018, Moussa et al., 2020]. En nous appuyant sur les équipes et les moyens expérimentaux du laboratoire, nous repoussons la frontière des petites échelles de temps et d'espace pour observer les causes de la micro-explosion optimale, lorsqu'elle est constatée sur notre banc d'essai.

D'autres auteurs travaillent :

- sur des flammes en sprays de combustibles émulsionnés en moteur, en cogénération ou en chaudière, souvent en portant une attention particulière aux émissions polluantes [Kumar et al., 2006b].
- sur la modélisation physique de la micro-explosion [Castanet et al., 2023], par exemple avec les hypothèses "Frozen limit" et "Distillation limit" concernant la vaporisation de l'émulsion [Law et al., 1980].
- sur sa simulation numérique, au prix d'un raffinement considérable des pas de temps et d'espace [Shinjo et al., 2014].

Considérant leurs résultats, nous nous intéressons particulièrement à une formulation adéquate du combustible émulsionné, ainsi qu'aux paramètres extérieurs (température, pression etc.) menant à une efficacité optimale du procédé. Ceci afin de contribuer à notre recherche expérimentale sur la goutte individuelle d'émulsion chauffée, dont l'objectif se résume à une fonction à plusieurs variables (température, fraction d'eau, diamètre initial etc.), non-linéaire avec un terme d'histoire thermomécanique, donnant la probabilité d'une micro-explosion réussie.

4 Intensification de l'émulsification, du mélange et de l'absorption gaz-liquide en mini-canal

L'ingénierie des procédés (*Chemical Engineering*) vise au progrès industriel concernant des secteurs entiers de notre vie quotidienne, d'importance économique souvent stratégique et d'enjeu écologique de plus en plus pressant : pharmacie, agroalimentaire, carburants, matériaux, pétrochimie/raffinage, dépollution/recyclage, impression 3-D, textiles etc.

Derrière l'appellation "Intensification des transferts", ce progrès consiste souvent⁶ à augmenter le rendement, l'efficacité d'une transformation physico-chimique au sein d'un écoulement gaz-liquide ou liquide-liquide [Yao et al., 2021] : émulsification, réaction chimique, mélange, séparation de phase (membrane), adsorption de polluant sur du charbon actif [Subrenat et al., 2003] (milieu poreux), etc. Nous détaillerons à ce propos les avantages très significatifs de la miniaturisation des procédés ("micro-réacteurs" [Plouffe et al., 2016]). Enfin cette intensification diminue généralement le coût énergétique et l'impact environnemental du procédé.

À partir de 2014 au Laboratoire de Thermique et Énergies de Nantes (LTEN UMR 6607), nous avons étudié l'intensification des transferts de chaleur et de masse dans des mini-canaux : cela désigne ici des écoulements confinés dans des largeurs comprises entre 200 μm et 2 mm. [de Gennes et al., 2005] expose un avantage de ces canaux, lorsqu'ils sont (i) d'une taille inférieure à la longueur caractéristique capillaire χ^7 et (ii) lorsque l'écoulement y est animé d'une vitesse relativement lente⁸ : la prépondérance de la tension interfaciale sur les forces de

^{6.} Les thèmes du congrès "European Process Intensification Conference" (EPIC Varsovie, 2023) https://www.epic2023.pw.edu.pl/index/topics/ sont tout à fait emblématiques.

^{7.} souvent de l'ordre du millimètre à l'interface gaz-liquide.

^{8.} par exemple, d'un écoulement gravitaire naturel.

viscosité, de gravité et d'inertie. Ce qui se conjugue avec la démultiplication de la surface spécifique (par unité de volume) qu'ils permettent au sein des écoulements dispersés [Zaloha et al., 2012]. Mis à part notre usage spécifique de pompes rapides [Belkadi et al., 2016], nos émulsions ou nos écoulements gaz-liquide en mini-canaux contiendraient ainsi des procédés centrés sur une reproductibilité précise, trouvant par exemple leur application dans la génération en grand nombre de granulés de taille rigoureusement identique.

Ces travaux trouvent une variété d'applications visant au développement du-rable :

- échangeur de chaleur multi-échelles : observation expérimentale d'une meilleure efficacité énergétique [Tarlet et al., 2014a].
- <u>émulsification à l'issue d'un distributeur multi-échelles :</u> à travers un procédé reproductible, cela produit des émulsions homogènes pour des procédés chimiques ou pharmaceutiques. [Zhou et al., 2017, Zhou et al., 2018].
- <u>émulsification à haut débit :</u> cela fractionne finement le combustible, à des débits de l'ordre de grandeur nécessaire à alimenter une installation énergétique en combustible émulsionné. Le tout visant à bénéficier de la seconde atomisation (cf. chapitre précédent) [Belkadi et al., 2015, Belkadi et al., 2016, Melo-Espinosa et al., 2018].
- <u>mélangeur bio-inspiré :</u> il met en présence des réactifs liquides de manière contrôlée et rapide, minimisant la dépense énergétique; d'où une meilleure efficacité de procédés chimiques [Tarlet et al., 2020].
- absorption chimique du CO_2 : sa capture est un objectif prioritaire en raison du réchauffement climatique; suite à sa capture, sa régénération ultérieure (désorption du CO_2 [Yanase et al., 2017]) alimente par exemple des serres pour la photosynthèse⁹.

Pour tout cela, notre approche se distingue des autres de deux manières :

- soit par une vitesse débitante plus rapide, ce qui se traduit par un ratio des forces visqueuses sur la tension interfaciale (nombre capillaire Ca Eq. 3.1) trois ordres de grandeur supérieur à ceux pratiqués dans la littérature; cela ouvre la voie à une application énergétique.
- soit par la géométrie de l'écoulement : technologie multi-échelles, chicanes ou réseau maillé. Notre conception géométrique répond alors à la problématique suivante : vaincre la résistance mécanique des interfaces (gaz-liquide ou liquide-liquide) sans le payer de trop de perte de charge.

4.1 Émulsification à haute vitesse débitante

L'émulsification, ou dispersion d'un liquide dans un autre qui ne lui est pas miscible, est largement pratiquée dans des mini-canaux [Zhao and Middelberg, 2011] qui génèrent lentement, une gouttelette après l'autre, des émulsions d'une taille très homogène que l'expérimentateur peut contrôler précisément [Engl et al., 2008]. Trois types de géométries sont souvent utilisées dans ce but [Zhao and Middelberg, 2011] : T-junction, flow-focusing et co-flowing; nous avons mis en œuvre ici une

^{9.} Localement, le Centre Technique Interprofessionnel des Fruits et Légumes (CTIFL, https ://www.ctifl.fr/) a déjà envoyé une équipe visiter notre laboratoire et nous questionner à ce sujet.

géométrie perpendiculaire de type cross-junction (Fig. 1.4 [Belkadi et al., 2015]) avec diagnostic optique *ad hoc.* D'autres types de géométries sont plus rarement exposées dans la littérature à des fins d'émulsification, comme par exemple des membranes [Abrahamse et al., 2001] ou des configurations spécifiques à l'image des "terrasses" [Sugiura et al., 2002].

Ce type de géométrie T-junction parvient généralement à émulsionner par la rupture d'un filet du liquide en phase dispersée, en fonction du rapport entre tension interfaciale et force de cisaillement (viscosité) [Tice et al., 2004] quantifié par le nombre capillaire Ca.



FIGURE 1.4 – Géométrie de notre mini-canal [Belkadi et al., 2015] traversé par un rayon laser polarisé - canaux de section carrée $300 \,\mu m$ pour l'eau, $600 \,\mu m$ pour l'huile.

Dans la perspective d'une alimentation d'une installation énergétique en combustible émulsionné, le nombre capillaire Ca devait être d'un ordre de grandeur supérieur à ceux pratiqués par d'autres auteurs (Fig. 1.5 [Belkadi et al., 2015]). Les filets de liquide deviennent alors repliés et courbés à de petites échelles, comme par des structures d'écoulement turbulent. En aval du procédé, le diamètre D_d des gouttelettes en phase dispersée est d'un ordre de grandeur plus fin, même s'il est moins homogène.



FIGURE 1.5 – Comparaison de la corrélation $D_d \propto (1/Ca)^{0.3}$ exposée par [Xu et al., 2006] à nos résultats de [Belkadi et al., 2015] (carré sombre). Ca: nombre capillaire, D_d : diamètre moyen des gouttelettes dispersées.

16

4.2 Intensification du mélange et de l'émulsification dans les géométries multi-échelles

L'introduction d'une géométrie multi-échelles répond à notre objectif de parallélisation des canaux, pour multiplier le débit traité par l'écoulement. Au départ, cette technologie a été développée [Wang et al., 2010] pour répondre à deux contraintes que sont [Luo, 2013] : (i) une répartition homogène des débits dans les canaux à chaque subdivision [Tondeur and Luo, 2004] et (ii) une perte de charge minimale sur l'ensemble des subdivisions successives. Ainsi, la géométrie multi-échelle prétend garantir l'équipartition d'un débit réparti par exemple dans 8 ou 16 canaux [Tondeur and Luo, 2004, Wang and Wang, 2007, Barber and Emerson, 2008]. Cette répartition homogène intensifie notamment les transferts de masse :

- le mélange : la durée caractéristique du mélange étant proportionnelle au carré de la distance, une subdivision en n canaux divise donc la durée nécessaire par n^2 [Erbacher et al., 1999].
- l'émulsification : le taux de cisaillement subi par le filet liquide étant identique dans chacun des canaux (cf. géométrie "T-junction" précédemment), l'émulsion produite serait donc homogène [Zhou et al., 2017]. En outre, la parallélisation des canaux [Kobayashi et al., 2007,Kashid et al., 2010] permet une production en masse.

La topologie multi-échelle est issue d'une imitation des réseaux vasculaires biologiques qui se subdivisent, puis se rencontrent en des intersections et finalement se rassemblent (Fig. 1.6) [Cieslicki and Piechna, 2009], le tout au prix d'une perte de charge acceptable voire minimisée [Chen et al., 2011]. La fonction naturelle de ce genre d'écoulement étant d'assurer un transfert chimique optimal (respiration d'un poumon, assimilation par le foie). La géométrie multi-échelle est ainsi applicable à une variété de procédés : échangeur de chaleur, émulsification (visant l'homogénéité de l'émulsion produite) ou encore mélangeur, contacteur gaz-liquide [Yue et al., 2010] pour l'absorption du CO_2 .



FIGURE 1.6 – Vue schématique du mélangeur à géométrie multi-échelles "splitintersect-recombine" (A) : vue frontale; (B) vue isométrique - réseau maillé de section rectangulaire $1 \times 1.1 \, mm$ (C) Topologie vasculaire cf. Benoît Charlot ©IES (CNRS/Université de Montpellier), 2018; repris dans [Tarlet et al., 2020].

18

4.3 Absorption chimique du CO_2 en mini-canal

Un état de l'art de la littérature scientifique [Cheng et al., 2023a] nous a permis de dégager nos priorités dans ce domaine où s'activent de nombreuses équipes. Parmi les sujets abordés dans ce chapitre, sa réaction chimique en fait celui le mieux apparenté au "génie des procédés" (mot-clef "Chemical Engineering"). L'intérêt environnemental de la capture de CO_2 à l'échappement des procédés industriels n'est plus à démontrer, poussant les pouvoirs publics à fixer des objectifs de neutralité carbone [Schreyer et al., 2020].

Dans ce contexte, nous choisissons de travailler à intensifier l'absorption chimique du CO_2 en mini-canal plutôt que (i) son absorption physique (à hautes pression et température), (ii) son adsorption sur surface poreuse, ou sa séparation (iii) par membrane, (iv) par distillation cryogénique [Madejski et al., 2022, Murai and Fujioka, 2008, Stewart and Hessami, 2005] (Fig. 1.7). Par sa dimension millimétrique, le mini-canal intensifie déjà en lui-même le transfert grâce à la démultiplication de l'aire de l'interface gaz-liquide par unité de volume; c'est pourquoi son taux de transfert $k_L a$ y est un voire trois ordres de grandeur supérieur à ceux des installations industrielles classiques (réacteurs à lits fixes, colonnes à garnissage) [Cheng et al., 2023b, Larachi et al., 1998, Zeng et al., 2011]. En outre, la miniaturisation du procédé évite les inconvénients inhérents à des installations chimiques de grande capacité (risque industriel SEVESO, coûts de maintenance et d'entretien etc.).



FIGURE 1.7 – Le domaine de l'absorption chimique du CO_2 dans la littérature [Cheng et al., 2023a].

Pour intensifier le transfert, nous n'utiliserons pas d'ultrasons ni d'agitation mécanique extérieure. Voici les sujets sur lesquels nous choisissons de porter nos efforts¹⁰ pour intensifier le transfert de masse :

- la géométrie bordant l'écoulement, y compris par des obstacles à l'intérieur pour déformer l'interface gaz-liquide.
- paralléliser massivement¹¹, pour le débit traité et vers des applications identifiées.

^{10.} à même nature de solvant monoéthanolamine (MEA)

^{11.} C'est en projet au moment de la rédaction de ce mémoire de HDR.

^{4.} INTENSIFICATION DE L'ÉMULSIFICATION, DU MÉLANGE ET DE L'ABSORPTION GAZ-LIQUIDE EN MINI-CANAL

4.4 La démarche scientifique suivie

Pour l'étude de l'intensification des transferts de chaleur et de masse dans les écoulements gaz-liquide et liquide-liquide, l'expérimentation dans des mini-canaux (entre 200 μm et 2 mm) est pratiquée de manière à quantifier l'efficacité du procédé, souvent grâce à des diagnostics optiques non-intrusifs. Quand c'est possible, leur efficacité est alors comparée aux performances obtenues par d'autres expérimentateurs dans la littérature. Finalement une modélisation par un simple bilan, ou une simulation numérique menée par un collègue spécialisé permettent d'interpréter notre résultat expérimental pour en approfondir la signification. À cet égard, il est à noter que les expériences en mini-canaux fournissent à la simulation CFD des conditions aux limites et des photographies précises, permettant des comparaisons fiables.

5 Contenu et organisation du mémoire

Sur chacun des deux axes d'intensification des transferts de chaleur et de masse, que ce soit les causes de la micro-explosion optimale ou les écoulements dispersés dans les mini-canaux, les investigations scientifiques sont présentées suivant une trame propre aux travaux expérimentaux :

- État de l'art bibliographique mettant en lumière les principaux phénomènes physiques impliqués dans le procédé (souvent quantifiés par les nombres adimensionnels adéquats), la manière dont les autres auteurs ont abordé cette problématique et les faits majeurs qu'ils en ont retirés, et les questions non résolues à ce jour dont nous pourrions nous saisir;
- Conception de notre installation avec son dimensionnement intrinsèque, sans oublier les moyens de diagnostic optique non intrusifs nous donnant accès aux petites échelles de temps ($\simeq 1 ms$) et d'espace ($\simeq 5 \mu m$) dans notre investigation expérimentale;
- Plan d'expériences choisi, précautions particulières concernant la durée des procédés et la collecte de données (particulièrement la reproductibilité dans le cas de la micro-explosion), résultats obtenus et éventuellement comparés à d'autres travaux de la littérature;
- Conclusions et perspectives envisagées pour la suite des investigations, dans chacun de ces deux axes d'intensification des transferts de chaleur et de masse.

Le **Chapitre 2** présente nos investigations sur la généalogie de la micro-explosion réussie ; l'intensification des transferts de chaleur et de masse y est étudiée de manière expérimentale à l'extérieur puis à l'intérieur de la goutte d'émulsion chauffée, souvent avec ses effets sur l'efficacité de la fragmentation obtenue (nombre et vitesse des gouttes-filles) dans le but d'optimiser le procédé.

Le **Chapitre 3** présente nos travaux sur les écoulements gaz-liquide ou liquideliquide dans des mini-canaux à des fins de mélange, d'émulsification et de capture du CO_2 ; des diagnostics optiques y sont souvent utilisés pour remonter aux causes de l'efficacité du procédé mesurée en aval.

Le **Chapitre 4** sera une conclusion générale, résumant les apports de ces travaux portant sur l'intensification des transferts de chaleur et de masse au sein de différents procédés et vers la micro explosion optimale, au service du développement durable. Les perspectives d'avenir sont également présentées, avec leur positionnement par rapport à d'autres équipes. Mes indicateurs bibliométriques personnels seront enfin présentés avec mon curriculum vitæ, et une présentation succincte de mes activités d'enseignement.

Chapitre 2

Vers la micro-explosion optimale

1 Synopsis

Étant donné le bénéfice environnemental de la seconde atomisation dans le spray, nous souhaitons garantir la micro-explosion optimale (et non le "puffing") au niveau de la goutte individuelle de combustible émulsionné. Pour ce faire, l'étude en laboratoire se focalise sur la goutte d'émulsion chauffée (selon le mode de transfert Leidenfrost / conductif, convectif, radiatif) en s'attachant à la reproductibilité de ce phénomène considéré ici comme stochastique. Les paramètres tant internes (fraction / dispersion de l'eau) qu'externes (température, mode de transfert thermique etc.), ainsi que l'histoire thermo-mécanique de l'émulsion avec la coalescence, permettent de progresser vers le but ultime : la formulation donnant la probabilité de micro-explosion optimale de la goutte d'émulsion chauffée.

2 Introduction

Au départ, l'intérêt sociétal de l'étude de la micro-explosion incite un nombre croissant d'équipes de recherche à se saisir du sujet (Fig. 2.1). Quels en sont les principales caractéristiques et limitations? Quels aspects du phénomène font aujourd'hui l'objet de tant de travaux scientifiques? En tant que collectif de recherche, que choisissons-nous dans ce contexte comme axe d'investigation?

2.1 L'intérêt de la seconde atomisation

Dans une perspective de développement durable, la valorisation de déchets (par exemple les graisses animales issues de l'industrie agro-alimentaire [Kumar et al., 2006b, at al., 2005]) consiste à brûler des combustibles liquides huileux aux caractéristiques proches de celles du fioul lourd, généralement plus denses et visqueux que le diesel. Cela pose une première difficulté : fractionner finement le spray de combustible (pour le brûler efficacement) sera plus coûteux sur le plan énergétique. Deuxième difficulté : lorsqu'ils brûlent, ces combustibles alternatifs produisent davantage de résidus carbonés polluants nommés "particules" [Marrone et al., 1984].

À l'échelle du spray en combustion, la seconde atomisation (Fig. 2.2) répond efficacement à ces deux problématiques. Le combustible huileux est d'abord mis en émulsion (définie comme une dispersion métastable d'un liquide dans un autre qui ne



Mot-clef "micro-explosion" sur Science Direct

FIGURE 2.1 – Articles ayant pour mot-clef "micro-explosion" sur Science Direct.

lui est pas miscible en présence d'un tensio-actif [Bremond and Bibette, 2012a]) avec une part d'eau. Sous l'effet du chauffage intense et à travers plusieurs étapes dont nous allons reparler, cette eau interne finit par se vaporiser menant au phénomène de micro-explosion (à l'échelle d'une goutte) et se traduisant à l'échelle du spray par la seconde atomisation. Celle-ci fractionne la goutte d'émulsion en une multitude de "gouttes-filles", venant en aide à un brûleur qui n'aurait pas fractionné assez finement le combustible dense et visqueux. Elles brûleront bien plus vite, d'après la loi d'évolution " D^2 -law" [Sirignano, 1983, Williams, 1973] (décroissance linéaire du diamètre au carré au cours du temps) généralement observée. Sans oublier l'augmentation spectaculaire de l'aire de l'interface du combustible avec l'air [S.Vellaiyan and K.S.Amirthagadeswaran, 2016].



FIGURE 2.2 – Micro-explosion et seconde atomisation [Syed Masharuddin et al., 2022], ici avec de l'huile de palme.

Autre conséquence de la seconde atomisation, celle-ci mesurée à l'échappement : une baisse drastique (autour de 50% [Ballester et al., ,Jacques et al.,]) des émissions de résidus carbonés solides nommés "particules", parfois jusqu'à 80% [Sjogren,

2. INTRODUCTION

1977, Mattiello et al., 1992]. La raison en est simple : l'effet mécanique de la microexplosion confère à ces résidus carbonés une structure plus fragile (photographiée dans [Ocampo-Barrera et al., 2001]), elles brûlent donc davantage avant d'atteindre l'échappement et d'être émises dans l'atmosphère.

Comment pouvons-nous garantir la seconde atomisation? Elle résulte d'une multitude de micro-explosions réussies à l'échelle de chaque goutte d'émulsion. C'est donc au niveau d'une goutte individuelle d'émulsion que les causes menant à la micro-explosion doit être davantage connues, par conséquent c'est à cette échelle que nous mènerons nos investigations.

2.2 Réussir une micro-explosion

Dans le meilleur des cas, l'histoire thermo-mécanique de la goutte d'émulsion chauffée (Fig. 2.2) aboutit à la micro-explosion qu'on souhaite voir fragmenter le plus finement possible la goutte d'émulsion. Cette histoire thermo-mécanique comporte généralement :

- un chauffage intense qu'on reproduit bien sûr en laboratoire [Tarlet et al., 2014b] mais qu'on souhaiterait identique à celui exercé par le spray en combustion, dans ses composantes radiatives [Strizhak et al., 2017] ou convectives [Antonov et al., 2020a].
- la coalescence de l'eau interne reconnue comme cruciale vis-à-vis de la micro-explosion [Watanabe et al., 2010],
- parfois du "puffing", une désintégration partielle de la goutte que [Watanabe et al., 2010] distingue de la micro-explosion, désintégration totale, fine et soudaine accompagnée d'un bruit de claquement caractéristique [Mura et al., 2010] qui n'échappe pas à l'expérimentateur.

Tout cela impose à qui veut étudier la micro-explosion de rester conscient des nombreux facteurs interconnectés (transfert thermique, coalescence de l'eau etc.) menant à sa réussite finale¹. Le phénomène est considéré comme stochastique, il dépend de nombreux facteurs dont une histoire thermo-mécanique, une intégrale au cours du temps. C'est pourquoi on observe sa réussite (ou non) sur un grand nombre d'essais reproductibles. Puis on en tire une probabilité de micro-explosion, maximisée dans une configuration qu'on qualifiera d'"optimale".

Dans ce contexte, suite à ma thèse sur la micro-explosion soutenue le 5 mars 2008^2 et à celle d'Ernesto Mura soutenue au LTeN le 14 juin 2011^3 , étant moimême arrivé fin 2009 au LTeN qui tire sa force d'une dominante expérimentale avec des moyens de métrologie repoussant les limites des petites échelles de temps et d'espace, nous nous sommes naturellement orientés vers l'étude expérimentale de la micro-explosion d'une goutte individuelle d'émulsion chauffée au laboratoire.

Deux périodes majeures se succèdent :

A l'extérieur de la goutte d'émulsion, ce cheminement débuta en 2012 par l'étude de la population de gouttes-filles issues de la micro-explosion ou de son effet

^{1.} généralement au bout d'1 à 10 secondes en laboratoire

^{2.} intitulée "Contribution à la combustion des émulsions de l'eau dans le fioul lourd"

^{3.} intitulée "Contribution à l'étude de la micro-explosion d'une goutte d'émulsion d'eau dans l'huile : impact de la granulométrie de la phase dispersée"

thermique global mesurée en DSC⁴, en s'appuyant sur l'émulsion déterminée comme "optimale" par Ernesto Mura [Mura et al., 2010]. La problématique qui se pose se résume à : "Comment pouvons-nous, à partir de la population de gouttes-filles qui en sont issues, déduire les lois du fractionnement très court de la goutte d'émulsion ($\leq 1 ms$ [Mura et al., 2010]) qu'en l'état actuel de la métrologie nous ne parvenons pas à saisir?" Cette étude des "caractéristiques intégrales" de la population de gouttes-filles a été poursuivie en 2017-2019 avec nos collègues russes Pavel Strizhak *et al.* [Shlegel et al., 2019].

Des moyens humains et financiers ont été employés :

- Un stage de l'École Navale sur la distribution d'énergie thermique des gouttesfilles (Anthony Dejean, 2012) combiné à mon propre séjour au CNR de Naples en 2013 (Pr. Patrizio Massoli, Italie) pour des mesures de calibration,
- La venue au LTeN de Christophe Allouis (CNR Naples, Italie) sur un dispositif de "mois invité" à Polytech Nantes en 2013,
- Un stage du Master international "Thermique-Énergétique" de Polytech Nantes (V. Kailash) en 2014.

Dans un second temps, à partir de septembre 2016 et avec l'aide de Patrizio Massoli (CNR Naples, Italie) à travers sa chaire Connect Talent Optical Diagnostics in Energy (ODE) de la Région des Pays de la Loire, nous avons pu nous appuyer sur des moyens de métrologie optiques non intrusifs plus sophistiqués pour mener des investigations à l'intérieur de la goutte d'émulsion chauffée et y rechercher les causes de la micro-explosion optimale :

- Thèse d'Omar Moussa au LTeN (Université de Nantes) de 2016 à 2019, intitulée "Étude, par diagnostics optiques, des conditions menant à la microexplosion d'une goutte d'émulsion eau/huile",
- Thèse de Thomas Naudin au LTeN (Université de Nantes) de 2020 à 2023, intitulée "Étude de l'impact de la micro-gravité sur l'atomisation de gouttes de carburants alternatifs émulsionnés".

À partir de 2018, nous avons également poursuivi une collaboration avec nos collègues russes de l'Université Polytechnique de Tomsk Pavel Strizhak *et al.* qui partageaient notre focalisation sur l'intérieur de la goutte d'émulsion chauffée selon différents modes de transfert, avec des moyens d'investigation optiques non-intrusifs. Eux-mêmes travaillaient de manière soutenue sur la micro-explosion, et formaient plusieurs jeunes chercheurs sur ce sujet; nos échanges sont suspendus depuis fin février 2022.

3 À l'extérieur de la goutte d'émulsion (2012-2016)

L'expérience acquise, tant à travers ma propre thèse qu'avec celle d'Ernesto Mura, nous permit à partir de 2012 de nous concentrer sur quelques-uns des phénomènes essentiels au déclenchement de la micro-explosion :

— nucléation homogène ou hétérogène [Avedisian and Glassman, 1981, Kadota and Yamasaki, 1982, Avedisian and Andres, 1978, Avedisian, 1980], un problème contourné par l'effet Leidenfrost qui maintient la goutte d'émulsion sur une couche de vapeur [Mura et al., 2014];

^{4.} Differential Scanning Calorimetry

- coalescence de l'eau interne en préalable à la micro-explosion [Segawa et al., 2000], et plus largement "histoire thermo-mécanique" de l'émulsion au cours de sa période de chauffe menant à la micro-explosion (ou pas),
- influence de la dispersion initiale de l'eau interne : au regard de la fragmentation constatée, l'émulsion éprouvée comme "optimale" (Fig. 1.2) dans la situation considérée avait des gouttelettes d'eau internes de 5 μm de diamètre (ses autres caractéristiques sont précisées dans [Mura et al., 2010]).
- utilisation d'huile de tournesol pour la phase continue, imitant les propriétés de combustibles issus de la valorisation de déchets organiques tout en étant une cinquantaine de fois plus visqueuse que l'eau. Ce point ne changera qu'en 2016 quand, avec nos premières investigations optiques à l'intérieur de la goutte d'émulsion, le besoin d'une phase transparente aux propriétés optiques standardisées s'est fait sentir.

3.1 Distribution d'énergie thermique des gouttes-filles

Ré-utilisant l'installation expérimentale qui chauffe la goutte d'émulsion par effet Leidenfrost [Mura et al., 2014], nous voulions analyser la population de gouttes-filles issues de la micro-explosion de cette émulsion éprouvée comme "optimale" sur cette même installation expérimentale [Mura et al., 2010]. Pour ce faire, nous les avons reçues sur une feuille de papier d'aluminium ("Thin Plate System" TPS, Fig. 2.3) observée par la caméra infra-rouge FLIR SC-7500 IR (fréquence d'acquisition 800 Hz, résolution spatiale $240 \,\mu m$). La feuille d'aluminium est d'une épaisseur de $25 \,\mu m$, avec de faibles valeurs de Biot qui lui garantissent d'être thermiquement mince, c'est-à-dire que le champ de température sur une face est très proche de celui sur l'autre face. Elle est peinte en noir sur la face mesurée, la peinture est appliquée au spray et sa masse est 25% de celle de la feuille d'aluminium. Tous les détails expérimentaux sont dans [Tarlet et al., 2014b].

Il est important de souligner que sur cette installation Leidenfrost, la goutte d'émulsion repose en fait sur sa propre vapeur. En effet l'expérimentateur la voit glisser rapidement sur la surface chauffée [Mura et al., 2012a]. Cela peut-il être assimilé à un transfert thermique purement conductif? En tout cas, la goutte d'émulsion est en contact direct avec sa propre vapeur à température de saturation. Dans notre cas l'huile (avec sa température de saturation autour de $250^{\circ}C$) y est majoritaire.

Le champ de température instationnaire mesuré sur la feuille donne, par l'intermédiaire du théorème de Green-Ostrogradski et de l'obtention du terme-source de chaleur S_d (Eqs. 2.1 et 2.2 [Tarlet et al., 2014b] où da est l'aire d'un pixel), la distribution d'énergie thermique des gouttes-filles (Fig. 2.4). Celle-ci est bien sûr fonction de leur taille et de leur température. Nous avons mené des tests de calibration de cette procédure, avec des gouttes de taille et de température connues, au CNR de Naples (Pr. Patrizio Massoli) en 2013.

$$E_d(A) = m_d \ Cp \ (T_d - T_a) = \int \left[\iint_A S_d \ e \ da\right] \ dt (2.1)$$

$$\iint_{A} S_{d} e \, da = \iint_{A} \left[\rho C_{P} \frac{\partial T}{\partial t} - \lambda \Delta_{xy} T - 2 \frac{h}{e} (T_{a} - T) - \frac{\epsilon \sigma_{SB}}{e} (Ta^{4} - T^{4}) \right] e \, da \, (2.2)$$

3. À L'EXTÉRIEUR DE LA GOUTTE D'ÉMULSION (2012-2016)

27



FIGURE 2.3 – Schéma de l'installation expérimentale [Tarlet et al., 2014b] : (A) surface maintenue à $375^{\circ}C$, (B) Goutte d'émulsion [Mura et al., 2010], (C) gouttes-filles projetées sur le "Thin Plate System" (TPS) (D) caméra Infra-rouge FLIR SC-7500 IR.



FIGURE 2.4 – Localisation des maximums locaux de température sur la feuille d'aluminium [Tarlet et al., 2014b]. À l'impact des gouttes-filles, le réchauffement était significatif durant 20 à 50 ms pour une fréquence d'acquisition de 800 Hz et une résolution spatiale de 240 μm par pixel.

Le résultat est représenté Fig. 2.5 pour l'émulsion "optimale". Il est superposé à une distribution log-normale théorique, qui donne la même valeur de E_d^* avec une probabilité de 82 à 85%. Notre interprétation est que, à partir de cette microexplosion optimale, la distribution d'énergie thermique des gouttes-filles résulte de plusieurs multiplications successives (plutôt que des additions successives qui auraient donné une loi normale) de facteurs indépendants. Nous avons déjà discuté de cette multitude de facteurs, et leur liste ne prétend pas être exhaustive : coalescence de l'eau, rupture de l'huile malgré la tension interfaciale maintenant sa cohésion, degré de métastabilité de l'eau au moment de la micro-explosion, etc.



FIGURE 2.5 – Distribution d'énergie thermique E_d^* des gouttes-filles issues de l'émulsion optimale - la loi log-normale E_d^* superposée (en noir) ayant la même moyenne et le même écart-type [Tarlet et al., 2014b].

3.2 Répartition de l'énergie mécanique des gouttes-filles

Toujours sur la distribution en énergie des gouttes-filles, après leur énergie thermique la question se pose de la répartition de leur énergie mécanique. En effet, la durée de la fragmentation due à la micro-explosion étant très brève ($\leq 1 ms$ [Mura et al., 2010]) et par conséquent difficile à analyser expérimentalement, **nous cherchons le mécanisme de cette fragmentation en dressant le bilan des énergies qui en résulte parmi les gouttes-filles :** leurs énergies cinétiques, et leur énergie de surface ($\sigma \times 4 \pi R_d^2$) par rapport à celle de la goutte-mère d'émulsion dont elles sont issues. Plus tard (en 2018-2020), nous avons continué à travailler sur cette répartition de leur énergie mécanique avec nos collègues russes Pavel Strizhak *et al.* [Antonov et al., 2020b]. Ce qui est rendu possible par notre observation d'une unique goutte d'émulsion sur notre installation (Fig. 2.6 [Tarlet et al., 2016a]).

Les observations précédentes d'Ernesto Mura visibles Fig. 1.2 avaient mis en lumière le fait que les gouttes-filles partaient dans des directions qui n'étaient pas uniformément réparties selon l'angle, c'est-à-dire que leurs vitesses n'étaient pas tout à fait isotropes. On voit Fig. 1.2 la dislocation d'une coquille d'huile qui s'étend davantage vers les côtés qu'à la verticale ; la profondeur de champ et la résolution de la caméra optique pouvaient manquer certaines petites gouttes-filles en-deçà d'une certaine taille. D'où notre positionnement vertical de la caméra infra-rouge (Fig. 2.6) qui repère mieux les gouttes-filles du fait de leur chaleur, et dont la profondeur de champ correspond mieux à leur localisation. Cependant, sa résolution de 210 μm par pixel pourrait manquer certaines gouttes-filles parmi les plus petites : elles ont dans l'ensemble un "Sauter mean diameter" de 400 μm dans la situation testée [Mura et al., 2010].

Le résultat est visible Fig. 2.7 : on voit les gouttes-filles animées de leur vitesse initiale jusqu'à ce qu'elles refroidissent, devenant moins visibles aux infra-rouges. D'où le calcul de leur énergie cinétique et de leur énergie de surface, immédiatement après leur formation à partir de la goutte-mère d'émulsion.

Les vitesses initiales des gouttes-filles issues de la micro-explosion optimale sont montrées Fig. 2.8 sous forme adimensionnelle V^* (valeur de 0 à 1). La ligne noire est une loi log-normale ayant les mêmes moyenne et écart-type que les données expérimentales : encore une fois (cf. Fig. 2.5), la corrélation à ce type de loi indique que leur vitesse initiale résulte d'une succession de multiplications (plutôt que d'additions) de plusieurs facteurs indépendants.

Cherchant à mieux comprendre la répartition de l'énergie mécanique des gouttesfilles, nous calculons leur ratio de l'énergie de surface sur l'énergie cinétique (Eq. 2.3) dont on peut remarquer qu'il est inversement proportionnel à leur rayon R. Le résultat est visible Fig. 2.9, où avec un ordre de grandeur de différence la comparaison est nettement marquée : sachant que les vitesses initiales V sont plus rapides pour le cas "Bigger", la micro-explosion optimale privilégie l'énergie de surface à l'énergie cinétique parmi les gouttes-filles. Autrement dit, la micro-explosion optimale produit des gouttes plus petites, mieux fractionnées mais pas plus rapides.

$$\frac{\sigma \times 4\pi R^2}{\frac{1}{2}mV^2} = \frac{12}{We} = f\left(\frac{1}{R \times V^2}\right) \tag{2.3}$$



FIGURE 2.6 – Schéma de l'installation expérimentale [Tarlet et al., 2016a] - (A) Plaque chauffante maintenue à $375^{\circ}C$, (B) Goutte d'émulsion subissant une microexplosion, (C) Cache opaque aux infra-rouges, (D) Gouttes-filles projetées dans la profondeur de champ de la caméra infra-rouge FLIR SC-7500, (E) Schéma de l'image infra-rouge acquise.

3.3 Impact de la coalescence de l'eau interne

Après avoir étudié la répartition de l'énergie -tant thermique que mécaniqueparmi les gouttes-filles, **nous commençons à porter notre investigation vers l'intérieur de la goutte-mère d'émulsion** en commençant par le phénomène reconnu comme y étant crucial pour le déclenchement d'une micro-explosion réussie : la coalescence de l'eau interne [Segawa et al., 2000, Mura et al., 2012b]. Néanmoins, notre installation expérimentale opère un bilan thermique sur l'ensemble de la goutte d'émulsion chauffée : il s'agit de la DSC (*Differential Scanning Calorimetry*) [Tarlet et al., 2016b].

L'expérience consiste à chauffer assez rapidement (échauffement jusqu'à $200^{\circ}C$ sur 2 minutes) une goutte d'émulsion contenant une unique gouttelette interne d'eau, imitant une coalescence achevée, jusqu'à ce que le système détecte un important flux thermique sans accroissement notable de température (Fig. 2.10), signe d'un brusque changement de phase équivalent pour nous à la détection de la micro-explosion. Les thermogrammes obtenus à la DSC peuvent alors être comparées à ceux obtenus par Ernesto Mura *et al.* [Mura et al., 2012a]. La micro-explosion se produira-t-elle à des températures comparables?

C'est tout l'intérêt de reporter les pics de température (celui du changement de phase Fig. 2.10) pour nos gouttes d'émulsion à unique gouttelette d'eau et pour les gouttes d'émulsion fractionnées chauffées dans les mêmes conditions par [Mura et al., 2012a] sur le graphe Fig. 2.11. On y constate que la micro-explosion se produit à un niveau de température identique (de 100 à $140^{\circ}C$) pour notre émulsion à unique

3. À L'EXTÉRIEUR DE LA GOUTTE D'ÉMULSION (2012-2016)



FIGURE 2.7 – Six images (159×455 pixels) de la micro-explosion optimale (1-6) saisies avec une résolution de 210 μm par pixel, enregistrées à une fréquence d'acquisition de 1500 Hz avec 140 μs de durée d'intégration [Tarlet et al., 2016a].



FIGURE 2.8 – Fonction densité de probabilité (p.d.f) des vitesses des gouttes-filles issues de la micro-explosion optimale - la courbe noire est une distribution lognormale [Tarlet et al., 2016a].



FIGURE 2.9 – Ratio de l'énergie de surface sur l'énergie cinétique, pour chacune des 288 et 228 trajectoires identifiées de la micro-explosion optimale et d'une non-optimale ("Bigger") - triées par ordre décroissant [Tarlet et al., 2016a].



FIGURE 2.10 – Thermogramme interprété comme la micro-explosion d'une goutte d'émulsion - l'augmentation subite du flux thermique sans accroissement notable de température étant indicatrice de chaleur latente. Figure secondaire : La même expérience avec une goutte d'huile pure [Tarlet et al., 2016b].

3. À L'EXTÉRIEUR DE LA GOUTTE D'ÉMULSION (2012-2016)

gouttelette d'eau et pour celles fractionnées reportées dans [Mura et al., 2012a]. Le rectangle noir Fig. 2.10 représente la taille de la gouttelette interne d'eau que contiendraient les émulsions de [Mura et al., 2012a] si toute leur eau interne s'y était rassemblée en une gouttelette unique.



FIGURE 2.11 – Pics de température des expériences DSC avec unique gouttelette d'eau (en gris) [Tarlet et al., 2016b] comparés à ceux enregistrés par [Mura et al., 2012a]. Le rectangle noir est la taille de la gouttelette interne d'eau qu'auraient les émulsion de Mura *et al.* si toute leur eau interne s'y était coalescée en une gouttelette unique.

Nous interprétons cette similitude d'intervalle de température entre gouttelette d'eau unique et émulsion fractionnée comme étant en faveur de l'hypothèse d'une coalescence de l'eau interne menant à la micro-explosion de l'émulsion. Coalescence qui a déjà été photographiée [Mura et al., 2012a] mais qui, pour être étudiée plus précisément, nécessite de progresser dans nos moyens de métrologie vers les petites échelles de temps et d'espace à l'intérieur de la goutte d'émulsion. Et ce, de manière non-intrusive afin de ne pas déclencher la micro-explosion par de sites de nucléation hétérogène [Avedisian and Glassman, 1981, Kadota and Yamasaki, 1982, Avedisian and Andres, 1978, Avedisian, 1980]. C'est l'évolution que nous accomplissons au laboratoire LTeN à partir de 2016, avec l'aide du Pr. Patrizio Massoli (CNR Naples).

3.4 Enseignements retenus de l'extérieur de la goutte

Parmi les gouttes-filles issues de la micro-explosion, des distributions de type lognormale ont été observées Figs. 2.5 et 2.8. Concernant la structure initiale de l'émul-

3. À L'EXTÉRIEUR DE LA GOUTTE D'ÉMULSION (2012-2016)

sion, nous avons aussi observé une influence logarithmique dans [Antonov et al., 2020a] Fig. 2.12. Cette distribution logarithmique est interprétée comme résultant de l'interaction de multiples facteurs (mécaniques, thermiques etc.) indépendants les uns des autres.



FIGURE 2.12 – Taux de succès de la micro-explosion [Antonov et al., 2020a], en fonction de la structure initiale de l'émulsion. Nombre d'expériences reproduites [Nb].

Ces expériences en DSC Fig. 2.11 confirment le rôle crucial de la coalescence de l'eau interne en tant qu'étape menant à la micro-explosion. Comparer une unique gouttelette d'eau avec une distribution fractionnée sera une démarche également utilisée par la suite.

Pour mieux maîtriser la coalescence en tant qu'étape vers la micro-explosion optimale nous allons donc resserrer notre investigation vers l'intérieur de la goutte d'émulsion chauffée, considérant son histoire thermo-mécanique à de petites échelles de temps (ms) et d'espace ($\simeq 5 \, \mu m$).
4 À l'intérieur de la goutte d'émulsion (2016-2023)

Dans la continuité de l'expérience en *Differential Scanning Calorimetry* (DSC) précédente, où nous comparions deux configurations initiales "extrêmes" (soit dispersée, soit coalescée en une unique gouttelette) pour l'eau interne, nous focalisons davantage notre investigation sur l'intérieur de la goutte d'émulsion chauffée : nous allons cette fois-ci comparer différents diamètres initiaux, plus ou moins larges, pour l'eau interne.

Concrètement, grâce à des moyens optiques sophistiqués, nous entrerons à l'intérieur de la goutte d'émulsion chauffée pour observer l'histoire thermo-mécanique de ses gouttelettes internes d'eau jusqu'à la micro-explosion réussie (ou pas !).

4.1 Chauffage en régime Leidenfrost

Au cours de son chauffage jusqu'à la micro-explosion, l'émulsion subit des changements notables (convection, coalescence, etc.) mais elle garde en tout cas ses paramètres initiaux : la dispersion initiale de son eau interne, avec le diamètre moyen des gouttelettes d'eau D_w . Le nombre de Ohnesorge (Eq. 2.4) quantifie pour nous la mobilité des gouttelettes internes d'eau de densité ρ_w et de diamètre moyen D_w à travers la phase continue de viscosité μ_c .

$$Oh = \frac{\mu_c}{\sqrt{\sigma_{w/o} \,\rho_w \, D_w}} \tag{2.4}$$

Dans le cadre de la thèse d'Omar Moussa (2016-2019), l'observation de la goutte d'émulsion chauffée s'opère désormais sur une plaque chauffée en aluminium circulaire convexe (Fig. 2.13) de 6 mm de diamètre, maintenue à une température de consigne fixée entre $450^{\circ}C$ et $500^{\circ}C$. L'aluminium étant très conducteur de la chaleur, pour maintenir une température homogène sur la plaque. Comme dans la section précédente, sa température est assez élevée pour maintenir un régime Leidenfrost [Mura et al., 2012b] où la goutte glisse sur un film de sa propre vapeur. L'expérimentateur constate ce glissement rapide de la goutte sur la plaque chauffée.





4. À L'INTÉRIEUR DE LA GOUTTE D'ÉMULSION (2016-2023)

La Fig 2.14 montre un exemple de micro-explosion réussie; la désintégration est soudaine et totale, accompagnée d'un bruit net reconnu par l'expérimentateur [Moussa et al., 2018]. Le "puffing" n'est qu'une désintégration partielle [Watanabe et al., 2010], même si une micro-explosion peut se produire après plusieurs épisodes de "puffing". Pour chaque émulsion testée, on reproduit 25 fois l'expérience sur la plaque chauffée et on en déduit un pourcentage de micro-explosion réussie.



FIGURE 2.14 – Séquence d'images d'une micro-explosion sur la plaque chauffante Fig. 2.13 (6 mm. de diamètre, durée d'exposition $\leq 0.2 ms$) [Moussa et al., 2018]

Le graphe Fig. 2.15 montre l'évolution de ce taux de micro-explosion réussie, en fonction du nombre d'Ohnesorge (Oh). Si la valeur de Oh diminue, la mobilité des gouttelettes internes d'eau augmente (et vice versa) : elles seraient plus grandes parmi une phase continue moins visqueuse (la phase continue est ici du diesel, moins visqueux que l'huile de tournesol). C'est donc la mobilité des gouttelettes d'eau, facilitant leur coalescence, qui favorise la micro-explosion jusqu'à un taux de succès de 60%.

Après la mobilité des gouttelettes internes d'eau, nous poursuivons notre investigation des causes de la micro-explosion à l'intérieur de la goutte d'émulsion : **leur histoire thermo-mécanique, tout au long de la durée de chauffe,** est à découvrir par des moyens optiques non-intrusifs. Avec l'aide du Pr. Patrizio Massoli (CNR Naples), la LIF 2-couleurs (LIF 2-c) est mise en place autour de la plaque chauffante en régime Leidenfrost (Fig. 2.13). La Fig. 2.16 schématise l'installation expérimentale sur table optique au laboratoire LTEN. Un faisceau laser vert d'une puissance maximale de 5.5 W (Nd-YAG Spectra Physics - seconde harmonique $\lambda = 532 nm$) illumine la goutte d'émulsion. La caméra de marque PHOTRON V4 Fastcam acquiert des images à 5000 Hz, avec 0.125 ms de durée d'intégration. Tous les détails de l'installation sont dans [Moussa et al., 2020]. Ses principales caractéristiques sont :

- un traceur (rhodamine B) soluble dans l'eau, mais pas dans la phase continue (huile de silicone transparente aux deux longueurs d'onde de la LIF 2-c). En effet nous étudions l'histoire thermo-mécanique des gouttelettes internes d'eau;
- une calibration rigoureuse des signaux lumineux en fonction de la température : la rhodamine B est retenue ici comme traceur, car son ratio des deux longueurs d'onde reçues était clairement monotone avec la température. La
- 4. À L'INTÉRIEUR DE LA GOUTTE D'ÉMULSION (2016-2023)



FIGURE 2.15 – Taux de succès de micro-explosion en fonction du nombre d'Ohnesorge initial de l'émulsion [Moussa et al., 2018]

- calibration a été opérée sur une goutte d'eau unique dans un bain thermostaté [Moussa et al., 2020];
- un ratio de deux couleurs qui n'est pas fonction de la concentration en traceur, ni de la taille de la gouttelette d'eau même si son image peut être déviée (au sens de la localisation apparente) par la surface sphérique de la goutte d'émulsion.



FIGURE 2.16 – Installation expérimentale : mesure de température par LIF 2 couleurs [Moussa et al., 2020] sur table optique.

Notre procédé de mesure de température par LIF 2-couleurs est schématisé Fig. 2.17 sur l'image d'une goutte d'eau unique dans un bain thermostaté d'huile silicone (transparente) : un *beam splitter* (Hamamatsu "Gemini") sépare le faisceau fluorescent ré-émis par la goutte d'émulsion en deux, chacun passant à travers un filtre passe-bande (l'un de $600 \pm 5 nm$ et l'autre de $650 \pm 5 nm$). C'est ce ratio des intensités re-transmises par la rhodamine B (illuminée au laser vert $\lambda = 532 nm$) dans ces deux longueurs d'onde qui est fonction de la température f(T) (Eq. 2.5) :

$$\frac{I_{\lambda_1}}{I_{\lambda_2}} = f(T) \tag{2.5}$$

Le ratio des deux longueurs d'onde $(I_{\lambda_1}/I_{\lambda_2})$ est opéré sur chaque pixel de l'image obtenue Fig. 2.17 par un algorithme de correspondance de pixel, qu'on peut résumer par une superposition optimale des deux images. On obtient ainsi le champ de température de la gouttelette d'eau.



FIGURE 2.17 – Procédé de mesure de température par LIF 2 couleurs [Moussa et al., 2020] par algorithme de correspondance de pixels.

Le résultat peut être vu Fig. 2.18. L'histoire thermo-mécanique d'une gouttelette interne d'eau y est désignée sur quelques images successives de la goutte d'émulsion, approximativement à 1 ms d'intervalle. L'émulsion est de 5% Vol. d'eau dans du n-tétradécane avec 0.1% Vol. de SPAN 83 comme surfactant. On y voit la température de la gouttelette d'eau se refroidir de plus de $60^{\circ}C$ à $45^{\circ}C$ à mesure qu'elle s'éloigne du voisinage de la plaque chauffante pour rejoindre les régions supérieures de la goutte. Cela confirme l'existence d'un gradient vertical de température dans la goutte d'émulsion chauffée par effet Leidenfrost. Plus généralement, cela montre **l'importance de descendre aux petites échelles de temps** (0.2 ms de fréquence d'acquisition ici) **et d'espace** (les gouttelettes d'eau ont au départ une taille moyenne proche de 100 μ m) pour comprendre les causes de la micro-explosion optimale : c'est en effet l'aboutissement de beaucoup d'efforts expérimentaux, humains et financiers.

Notre investigation plus précise à l'intérieur de la goutte d'émulsion nous a permis d'identifier la "Trigger drop", c'est-à-dire la gouttelette d'eau dont la vaporisation déclenche, par nucléation de proche en proche, la micro-explosion de l'ensemble de l'émulsion. Sa température est significativement supérieure à celle des autres gouttelettes d'eau, avec 10 à $20^{\circ}C$ de plus; cependant les températures des différentes gouttelettes d'eau tendent à devenir plus homogènes au cours de la durée de chauffe

4. À L'INTÉRIEUR DE LA GOUTTE D'ÉMULSION (2016-2023)



FIGURE 2.18 – Évolution de température d'une gouttelette interne d'eau, saisie par la LIF 2-couleurs [Moussa et al., 2020] dans la goutte d'émulsion chauffée.

du fait de la convection interne (mouvements tourbillonnaires visibles) qui transfère efficacement la chaleur et la masse.

Dans notre étude [Moussa et al., 2020] l'expérience a été reproduite 58 fois : 38 micro-explosions et 20 cas de "puffing", avec une durée de chauffe entre 300 et 1000 ms (483 ms en moyenne) où on observe de plus en plus de "puffings", désintégrations partielles intermédiaires (de 1 jusqu'à 6) à mesure que s'allonge la durée de chauffe jusqu'à la micro-explosion. La Fig. 2.19 montre 22 cas de "trigger drops" identifiables juste avant des micro-explosions. La plupart sont alors situées dans la moitié inférieure de la goutte, ce qui confirme l'effet de la gravité avec l'eau plus dense que le n-tétradécane. Compte tenu du fait qu'elles sont enchâssées dans la phase huileuse avec un surcroît de pression de Laplace, leur point d'ébullition devrait être supérieur à $100^{\circ}C$ et elles peuvent s'échauffer encore pour atteindre un état liquide métastable [Law, 1977]. Or si certaines sont bien plus chaudes que $100^{\circ}C$, certaines sont significativement plus froides que ce seuil. Il faut ici tenir compte de leur rapide échauffement (au cours de mouvements ascendants ou descendants, cf. Fig. 2.18) au cours d'une mesure saisie quelques ms avant la fragmentation, de l'imprécision inhérente à la complexité de la mesure elle-même, et du fait que la température est moyennée sur la gouttelette d'eau.



FIGURE 2.19 – Taille, localisation et température des "Trigger drops" [Moussa et al., 2020]

Dans l'ensemble, nous avons observé que les micro-explosions réussies ont été souvent déclenchées par des gouttelettes d'eau aux températures de quelques degrés inférieures au seuil de $100^{\circ}C$, mais qui déclenchaient alors la vaporisation de leurs voisines qui étaient à des températures proches. D'où l'importance d'un transfert de chaleur et de masse suffisamment intense dans la goutte, tout au long de sa durée de chauffe.

Poursuivant notre investigation sur l'énergie thermique de ces "Trigger drops",

41

4. À L'INTÉRIEUR DE LA GOUTTE D'ÉMULSION (2016-2023)

nous avons positionné sur un graphe (Fig. 2.20) leur énergie thermique (fonction de leur taille et de leur température mesurée avant la micro-explosion) en fonction de leur éloignement (R_t) du centre de la goutte. Ces trois paramètres sont ainsi mêlés : il en résulte que même une gouttelette de petite taille peut déclencher la micro-explosion pourvu qu'elle soit suffisamment chaude et assez proche du centre. Inversement, une gouttelette de grande taille, excentrée et de température plus froide, pourra déclencher la micro-explosion grâce à son énergie thermique plus élevée.



FIGURE 2.20 – Énergie thermique des "Trigger drops" [Moussa et al., 2020]

4.2 Chauffage radiatif et convectif

Considérant l'application ultime de nos travaux, celle d'un spray en combustion, nous sommes amenés à tester les différents modes de transfert thermique. En effet, une goutte de combustible y subira du transfert radiatif (de la flamme) venant d'une ou de plusieurs directions, en plus d'un chauffage convectif [Sazhin, 2017].

A l'issue de nos campagnes d'essais sur l'installation Leidenfrost Fig. 2.13, en particulier lors de notre collaboration à partir de 2018 avec l'équipe de Pavel Strizhak à l'Université Polytechnique de Tomsk (Russie), les autres modes de transfert thermique (notamment radiatif et convectif) ont été considérés avant d'être comparés à notre installation Leidenfrost davantage fondée sur un contact direct (Fig. 2.13 [Antonov et al., 2020a]) vis-à-vis de leur taux de succès de micro explosion et du délai menant à celle-ci.

Le module de chauffage radiatif Fig. 2.21 fut développé à l'origine pour un vol Virgin Atlantic en micro-gravité initialement prévu en 2021. Deux panneaux radiatifs "Bach Resistor Ceramics GmbH" ont leur température régulée entre 400 et 700°C, et leur émissivité est comprise entre 0.1 et 0.8 sur la gamme de longueur d'onde entre 3 et 12 μm [Naudin et al., 2022]. 4 mm séparent la goutte d'émulsion des panneaux radiatifs supérieur et inférieur. En avril 2021 nous y avons mesuré la décroissance d'une goutte d'émulsion chauffée; en la considérant comme du pur tétradécane, nous avons mesuré le ratio f_{σ} (Eq. 2.6) entre la puissance effectivement consommée à évaporer la goutte et celle émise par les panneaux radiatifs (fournie par l'alimentation électrique). Ce ratio f_{σ} est proche de 30%.

$$f_{\sigma} = \frac{-4\pi\rho L_V R^2 \frac{dR}{dt}}{\sigma \epsilon S \left(T_P^4 - T_a^4\right)}$$
(2.6)



FIGURE 2.21 – Module de chauffage radiatif (LTeN 2021) [Naudin et al., 2022]

Chacun des deux panneaux (TOP ou BOTTOM) pouvant être actionné séparément, nous avons remarqué au cours de tests préliminaires sur une goutte de pur tétradécane que sa vitesse d'évaporation était identique sous un chauffage BOTTOM à $430^{\circ}C$ et sous un chauffage TOP à $700^{\circ}C$ [Naudin et al., 2022]. Car la convection naturelle s'ajoute au chauffage radiatif lorsque c'est celui du bas (BOTTOM) : en

4. À L'INTÉRIEUR DE LA GOUTTE D'ÉMULSION (2016-2023)

effet le courant de convection remonte naturellement. Bien sûr, en micro-gravité ce phénomène serait affecté; et le chauffage radiatif de l'émulsion est lui-même affecté par les propriétés de l'eau, moins transparente au rayonnement thermique que le tétradécane (cf. explications et calculs détaillés à ce sujet dans [Naudin et al., 2022]). Bien qu'il puisse être équipé de ses propres caméra et système d'éclairage en arrièreplan prévus pour l'embarquement à bord du vol Virgin Galactic, le dispositif est ici monté sur la même table optique que dans la section précédente, dans la ligne de visée de la caméra PHOTRON SA-X2 (2000 fps, résolution 1280 * 1024 pixels) et du laser 532 nm (cf. Fig. 2.17). La Fig. 2.22 montre deux exemples de micro explosion (a) et de puffing (b) saisis dans notre module de chauffage radiatif Fig. 2.21.





FIGURE 2.22 – Micro-explosion optimale (a) - Puffing (b) [Thomas Naudin, 2023]

Observant l'intérieur de la goutte d'émulsion, nous cherchons à quantifier la convection interne menant à la coalescence des gouttelettes internes d'eau. Pour ce faire, nous y opérons leur suivi par l'algorithme de Particle Tracking Velocimetry (PTV) développé moi-même lors de mon stage post-doctoral à l'Université de Magdeburg (Allemagne) [Tarlet et al., 2012] consistant à minimiser l'accélération de l'ensemble des objets suivis au long des images successives (*trajectory steps*). Les résultats affichés Fig. 2.23 proviennent d'émulsions initialement de 20 μm de diamètre moyen, avec 7% wt. d'eau déminéralisée dans du tétradécane et 0.4% wt. SPAN 83. Le chauffage BOTTOM (à droite) donne de larges mouvements d'ensemble pour des gouttelettes internes d'eau de petite taille par rapport au chauffage TOP (à gauche) où leurs mouvements sont plus disparates [Thomas Naudin, 2023], avec des diamètres plus importants⁵.

L'indicateur I (Eq. 2.7) quantifie une convection interne plus ou moins propice à la coalescence de l'eau interne : un transport plus lent de gouttelettes plus grosses donnera une valeur inférieure de cet indicateur I, moyenne des ratios "vitesse sur diamètre" des gouttelettes sur une période représentative de l'ordre de 200 ms pendant la chauffe de la goutte d'émulsion. Ce ratio est adimensionnalisé par les valeurs D_{ref} et V_{ref} représentatives de l'échantillon de données ($V_{ref} = 2, 5.10^{-2} m.s^{-1}$, $D_{ref} = 2, 5.10^{-3} m$).

$$I = \frac{D_{ref}}{V_{ref}} \times \overline{\left(\frac{\|\vec{v_i}\|}{D_i}\right)}$$
(2.7)

^{5.} Dans notre référence citée, il y a normalement des exemples de données vidéo mis en ligne.



FIGURE 2.23 – Trajectoires des gouttelettes internes d'eau : chauffage TOP (à gauche) et BOTTOM (à droite) [Thomas Naudin, 2023]

L'influence de l'indicateur I est confirmée sur plusieurs cas menant à une micro explosion réussie ou pas (Fig. 2.24) : les cas où les gouttelettes internes sont plus grosses et plus lentes (c'est-à-dire où leur coalescence est favorisée) finissent en une micro explosion réussie. Et ceci est valable en chauffage purement radiatif (TOP) comme avec une part de chauffage convectif (BOTTOM) : les calculs détaillés exposés dans [Naudin et al., 2022] montrent que les puissances thermiques apportées par le radiatif et le convectif sont du même ordre de grandeur dans le cas du chauffage BOTTOM.

Toujours pour comparer l'influence des modes de transfert radiatif vs. convectif, d'autres campagnes d'essais en collaboration avec nos collègues de l'Université Polytechnique que Tomsk (Russie) [Antonov et al., 2020a] ont permis de confronter des mesures de probabilité de micro explosion obtenues dans plusieurs installations, dont leur unité de chauffage radiatif / convectif Fig. 2.25 également documentée dans [Volkov and Strizhak, 2018, Strizhak et al., 2017, Volkov and Strizhak, 2017]. Nous avions obtenue la Fig. 2.12, expliquée plus haut quant à l'influence logarithmique du ratio (D_{in} / D_d) sur la probabilité de micro explosion. Plus généralement, nous avions montré que le chauffage radiatif, convectif ou conductif (Leidenfrost Fig. 2.13) n'avait que peu d'influence sur le fait qu'une micro-émulsion $(1.2 \, \mu m$ de diamètre moyen) n'aboutit que rarement à la micro explosion, alors qu'avec l'eau interne répartie en une unique gouttelette celle-ci est obtenue dans 100% des cas.

<u>En conclusion / perspectives :</u> À l'aide de différentes installations expérimentales, nous avons varié le dosage entre les modes de transfert radiatif vs. convectif et même conductif (effet Leidenfrost). Déjà, nous avons observé des tendances très significatives du transport à l'intérieur de la goutte d'émulsion exerçant elles-mêmes une influence déterminante sur la micro explosion réussie (ou pas). Ce sujet est donc à approfondir davantage. Pour cela, afin d'imiter les conditions réelles d'une combustion en spray [Sazhin, 2017] mettons-nous en capacité de moduler la répartition entre puissances thermiques apportées par le transfert radiatif d'une part, et convectif d'autre part. Une installation expérimentale dédiée reste à concevoir dans

4. À L'INTÉRIEUR DE LA GOUTTE D'ÉMULSION (2016-2023)



FIGURE 2.24 – Influence de l'indicateur I (Eq. 2.7) sur la réussite de la micro explosion [Thomas Naudin, 2023]



FIGURE 2.25 – Installation de chauffage convectif [Antonov et al., 2020a]

ce but 6 .

4.3 Résumé des principales tendances observées

Les facteurs qui favorisent la micro-explosion sont ici listés à la manière de causes qui s'accumulent : plus il y en a, meilleure est la probabilité d'une micro-explosion réussie. Nos travaux explorent ses facteurs de réussite un par un ; mais c'est un phénomène (considéré ici comme stochastique) aux causes multiples, non-linéaires par exemple pour la coalescence et intrinsèquement dépendantes d'une histoire thermomécanique, d'une intégrale en fonction du temps.

- Le nombre d'Ohnesorge Oh décroissant qui favorise la micro-explosion : c'est dans le sens d'une mobilité qui favorise la coalescence, elle-même favorisée par la tension interfaciale (écart de pression de Laplace entre la grande et la petite gouttelette).
- L'histoire thermo-mécanique de la gouttelette interne d'eau aboutissant à une énergie thermique la plus élevée possible.
- Deux chauffages différents (i) radiatif ou (ii) convectif et radiatif ont déjà révélé une différence de convection interne, déterminante vis-à-vis de la coalescence.
- Le ratio "vitesse sur diamètre" des gouttelettes internes, en ses plus basses valeurs, favorise nettement la micro explosion.

<u>Voici la "recette" résumant nos huit années de travaux :</u> si vous souhaitez réussir la micro explosion, alors privilégiez cette formulation de l'émulsion : haute tension interfaciale et inhomogénéité de diamètre. Imposez aussi des conditions extérieures de chauffe plus radiatives que convectives, incitant les gouttelettes internes d'eau à se déplacer lentement et les unes vers les autres pour s'unir par la coalescence plutôt que dans de larges mouvements d'ensemble où elles restent côte-à-côte ! Laissez enfin ces gouttelettes internes accumuler progressivement en elles une énergie thermique la plus élevée possible, et faites en sorte que tout cela se passe dans la moitié inférieure de la goutte d'émulsion.

5 Conclusions scientifiques et faits marquants

Depuis ma thèse de doctorat intitulée "Contribution à la combustion des émulsions de l'eau dans le fioul lourd" (2004-2008) et à travers ces travaux cherchant une meilleure maîtrise de la micro-explosion optimale (depuis 2012 et toujours en cours), nous avons collectivement acquis une expérience significative dans ce domaine, avec une visibilité internationale sur ce sujet. Notre spécificité est d'être focalisés sur la goutte individuelle d'émulsion, plutôt à travers l'expérimental.

Concernant l'influence de la structure initiale de l'émulsion ainsi que les répartitions des propriétés observées parmi les gouttes-filles issues de ce phénomène, nous avons plusieurs fois observé des distributions de type logarithmique (log-normale). Ce type de distribution est interprété comme l'effet conjoint de plusieurs facteurs indépendants : thermiques, mécaniques, etc.

^{6.} On pense ici aux travaux du type "Technical note" publiés dans l'International Journal of Heat and Mass Transfer (IJHMT)

^{5.} CONCLUSIONS SCIENTIFIQUES ET FAITS MARQUANTS

Le caractère crucial de la coalescence en tant qu'étape menant à une microexplosion réussie, déjà observé par d'autres auteurs, est confirmé et considérablement précisé par nos travaux. En effet l'influence de la mobilité (nombre d'Ohnesorge OhFig. 2.15), de l'enthalpie atteinte (Fig. 2.20) et du ratio vitesse sur diamètre (Fig. 2.24) de l'eau interne a été quantifiée par nos observations à l'intérieur de la goutte chauffée. De plus, nous avons identifié l'influence du mode de chauffage de la goutte sur le devenir de sa phase interne d'eau, tant sur le plan thermique (propriétés radiatives) que mécanique (type de convection interne à la goutte d'émulsion).

Globalement, les aspects stochastiques de la micro-explosion conjugués à l'inévitable variabilité des propriétés des combustibles liquides (valorisation de déchets, etc.) offrent de nombreuses perspectives de recherche, qui paraissent loin d'être épuisées à ce jour. L'évolution du nombre d'articles ayant pour mot-clef "microexplosion" sur Science Direct (cf. Fig. 2.1) en témoigne.

6 Perspectives de recherche

En s'appuyant sur les conclusions précédentes, et par ordre de difficulté ⁷ croissante, voici les perspectives de recherche identifiées :

- (1) étudier l'usage de combustibles alternatifs : de synthèse (ex. Fischer-Tropsch), issus de la valorisation des déchets (ex. éthanol, agro-alimentaire, abattoirs) en comparaison avec un combustible calibré de laboratoire (ex. tétradécane).
- (1-2) par mimétisme avec les conditions réelles d'un spray en combustion, poursuivre l'étude de l'effet comparé (combiné, dosage) de l'apport de chaleur radiatif et convectif à la goutte d'émulsion, et pour cela concevoir une installation expérimentale modulaire et adéquate.
- (2) établir des bilans d'énergie mécanique, c'est-à-dire cinétique et de surface, au cours de la micro-explosion.
- (3) repousser davantage les frontières des petites échelles de temps (en-deçà de la milliseconde) et d'espace (résolution inférieure au μm) pour mesurer l'histoire thermo-mécanique de la phase d'eau interne;
- (3-4) saisir les stades intermédiaires de la dislocation de la phase continue huileuse sous l'effet de la micro-explosion.
- (3-4) comparer ces mesures à des modélisations pertinentes à ces niveaux de cisaillement intense, très rapide (on évoque ici le Level-set [Desjonqueres et al., 2017] et bien sûr [Shinjo et al., 2014])
- (3-4) Grâce à la modélisation et à la CFD, identifier et quantifier les différences entre une goutte d'émulsion unique et une combustion en spray : les connaissances de l'une peuvent-elles être extrapolées à l'autre?
- (4) identifier une fonction des paramètres initiaux et des conditions du procédé donnant le point optimal vis-à-vis de la micro-explosion. Cette fonction serait d'une grande importance tant énergétique qu'écologique. Elle prendrait en compte l'histoire thermo-mécanique (intégrale en fonction du temps) de l'émulsion. Enfin elle serait validée par nos propres campagnes expérimentales, et/ou par celles publiées dans la littérature.

^{7. (1)} stage de Master Recherche / (2) thèse de doctorat / (3) collaboration inter-équipes / (4) tâche d'une carrière de chercheur

Concernant le recrutement pour contribuer à ces travaux, le traitement de données, d'imagerie issue des appareils de mesure est une tâche essentielle qui impose le maniement de commandes à haut niveau d'abstraction (de type Python / Matlab) et des compétences poussées en optique et visualisation.

Chapitre 3

Intensification de l'émulsification, du mélange et de l'absorption gaz-liquide en mini-canal

1 Synopsis

Au service de procédés (i) d'émulsification (ii) de mélange liquide-liquide et (iii) d'absorption de gaz dans du liquide, **nous cherchons à optimiser le transfert de masse au sein d'un écoulement en mini-canal (de 0,3 à 1,5 mm de largeur).** Les avantages de ces échelles réduites, spécialement en écoulement diphasique, sont bien connus et largement utilisés. L'écoulement "diphasique" (*two-phase flow*) peut être gaz-liquide ou liquide-liquide [Zhao and Middelberg, 2011]. L'originalité de l'écoulement, tant par la géométrie qui le borde que par l'ordre de grandeur du débit qui y circule, constitue notre différenciation. Dans ces études expérimentales, nous utilisons des moyens de mesure optique non intrusifs (imagerie) qui nous permettent d'expliquer les performances obtenues; des bilans, des corrélations et même des simulations numériques nous y aident également.

2 Introduction

Le choix d'un mini-canal (ici de 0,3 à 1,5 mm de largeur) pour des procédés de transfert de masse gaz-liquide ou liquide-liquide offre plusieurs avantages physiques garantissant, par rapport au même procédé dans une citerne de l'ordre du mètre, une intensification des transferts :

- À ces dimensions inférieures à la longueur capillaire [de Gennes et al., 2005], on observe la prépondérance de la tension interfaciale (σ) sur les forces de cisaillement ($\mu \frac{\partial u}{\partial x}$) et sur la gravité (\vec{g}) garantissant une reproductibilité (monodispersion) bénéfique par exemple aux procédés d'encapsulation,
- une augmentation drastique de l'aire de l'interface spécifique bénéfique aux transferts de masse, particulièrement lorsqu'ils impliquent une réaction chimique [Tan et al., 2012, Wang et al., 2021].

Au-delà de ces aspects fondamentaux, même si un procédé fonctionne effectivement en citerne à l'échelle du mètre, le transposer en mini-canal permet de s'affranchir de plusieurs de ses inconvénients intrinsèques : coût d'investissement, masse

CHAPITRE 3. INTENSIFICATION DE L'ÉMULSIFICATION, DU MÉLANGE ET DE L'ABSORPTION GAZ-LIQUIDE EN MINI-CANAL

de solvants avec impact environnemental, encombrement et aspects de sécurité SE-VESO, etc. Il faut signaler en outre la modularité des mini-canaux en parallèle (*numbering-up* [Pan et al., 2014, Kobayashi et al., 2007, Kashid et al., 2010]) pouvant être actionnés en tout ou partie suivant le débit à traiter. Par conséquent cette intensification du transfert de masse est pratiquée en mini-canal pour une variété d'applications, dont celles qui nous intéressent ici :

- mélange et réaction chimique : contrôle précis de l'instant de mise en présence des réactifs [Hertzog et al., 2006]
- encapsulation de matériaux à changement de phase (PCMs) : [Li et al., 2019b]
- émulsification maîtrisée aux petites échelles : [Bremond and Bibette, 2012b, Zhao and Middelberg, 2011]
- Absorption chimique du CO_2 [Wang et al., 2021] [Cheng et al., 2023a, Cheng et al., 2023b]

Dans ce chap. 3 nous exposons notre démarche poursuivie au cours de :

- la thèse de doctorat de Mme Peipei Zhou soutenue le 02/06/2018 à l'Université de Canton (Chine, South China University of Technology SCUT, financement SCUT + convention d'accueil au LTeN du 01/09/2014 au 01/09/2016) pour l'émulsification,
- travaux menés nous-mêmes en 2019-2020 pour le mélange,
- la thèse de doctorat de l'Université de Nantes de M. Arab Belkadi soutenue le 03/03/2015 (financement Région Pays de Loire, Programme d'Études pour la Recherche Ligérienne en Énergie, PERLE 2 de 2011 à 2014) pour l'émulsification à haut débit,
- la thèse de doctorat de l'Université de Nantes de M. Hao Cheng (financement China Scholarship Council du 01/06/2021 au 31/05/2025) pour l'absorption de CO_2 .

3 Écoulements multi-échelles

Au départ, la géométrie multi-échelles prétend garantir l'équipartition d'un débit réparti par exemple dans 8 ou 16 canaux [Tondeur and Luo, 2004, Wang and Wang, 2007, Barber and Emerson, 2008]. Afin de répartir le procédé (émulsification, mélange) dans plusieurs mini-canaux, elle est utilisée ici pour mettre au point un distributeur et un collecteur. Un algorithme numérique d'optimisation structurelle a été développé [Wang et al., 2010] pour répondre à deux contraintes que sont [Luo, 2013] : (i) une répartition homogène des débits dans les canaux à chaque subdivision et (ii) une perte de charge minimale sur l'ensemble des subdivisions successives à l'image des réseaux vasculaires biologiques qui se subdivisient, opèrent un transfert de masse (respiration d'un poumon, assimilation par le foie, etc.) puis se rassemblent [Cieslicki and Piechna, 2009], le tout au prix d'une perte de charge naturellement minimisée [Chen et al., 2011].

La géométrie multi-échelle est applicable à une variété de procédés : échangeur de chaleur, émulsification (visant l'homogénéité de l'émulsion produite) et mélangeur, contacteur gaz-liquide [Yue et al., 2010] pour l'absorption du CO_2 . La géométrie multi-échelle utilisée ici (distributeur / collecteur avec subdivisions successives Fig. 3.1 [Yue et al., 2010]) procède d'une topologie différente de celle visant par exemple une répartition homogène dans un échangeur de chaleur à plaques [Luo, 2015], ou dans des canaux de réaction / mélange perpendiculaires aux subdivisions [Guo et al., 2013].



FIGURE 3.1 – Distributeur et collecteur à géométrie multi-échelle [Yue et al., 2010].

3.1 Émulsification

Partant de la répartition homogène de débit à travers les subdivisions de la géométrie multi-échelles mentionnée plus haut [Luo, 2013], **nous souhaitons la mettre à profit pour générer une émulsion aussi monodispersée que pos-sible.** À l'issue de multiples subdivisions, nous aurions plusieurs intersections eau vs. huile de type "Y-junction" où des gouttelettes d'eau seraient formées dans le courant de phase continue d'huile.

Le processus de génération d'une gouttelette d'émulsion au croisement de deux mini-canaux (eau et huile) résulte d'une rupture d'équilibre entre la tension interfaciale d'une part, et la contrainte de cisaillement exercée par l'écoulement de phase continue d'autre part. Dans leur revue bibliographique, [Zhao and Middelberg, 2011] détaillent trois régimes de rupture (squeezing - dripping - jetting) selon le ratio entre ces deux influences quantifié par le nombre capillaire Ca [De Menech et al., 2008]. Cet équilibre délicat à contrôler, fonction à la fois des champs de vitesse et de pression, sera-t-il exactement identique au bout de chacun des 16 canaux issus des subdivisions multi-échelles?

Notre mini-canal Fig. 3.2 [Zhou et al., 2017] répond à cette problématique par la mesure d'un faible écart-type (monodispersion) dans l'émulsion produite. Ses dimensions issues de la technologie multi-échelles [Luo, 2013, Yue et al., 2010] sont précisées Tab. 3.1.



FIGURE 3.2 – Vue schématique du mini-canal constructal. À droite : distributeurs d'eau et d'huile, collecteur d'émulsion. À gauche : vue en perspective des 16 jonctions "Y-type" eau vs. huile (largeur 1 mm, profondeur $600 \,\mu m$) [Zhou et al., 2017].

Bifurcation	Longueur du canal	Largeur	Profondeur
No.	(mm)	(mm)	(mm)
1	16	2.1	1
2	8	1.35	1
3	4	1	1
4	2	0.6	1



Lors d'une étude préliminaire sur un unique canal "Y-junction" Fig. 3.3 nous avons commencé par observer deux régimes d'écoulement liquide-liquide appelés

CHAPITRE 3. INTENSIFICATION DE L'ÉMULSIFICATION, DU MÉLANGE ET DE L'ABSORPTION GAZ-LIQUIDE EN MINI-CANAL

"droplet flow" avec la forme quasi-sphérique des gouttelettes d'eau (bien qu'observé ici dans un canal de section carrée) et "plug flow" avec une longueur de gouttelette fonction du ratio des débits respectifs des phases continue et dispersée. Dans notre configuration où l'écoulement de phase dispersée s'insère dans celui de phase continue (cf. configuration perpendiculaire "cross-flowing" [Zhao and Middelberg, 2011]), pour un nombre capillaire Ca suffisamment bas on observe un régime de type "plug flow" avec des inclusions d'eau plus longues que la largeur du canal. Pour de plus hautes valeurs du nombre capillaire Ca, les inclusions d'eau raccourcissent significativement. Une tendance similaire a été observée par [Tice et al., 2004].



FIGURE 3.3 – Photographies de l'écoulement eau-huile dans l'unique canal "Y-junction"

Les mesures de diamètre des gouttelettes d'eau menées dans la dernière branche du collecteur du mini-canal Fig. 3.2 donnent les résultats Fig. 3.4. La qualité de l'émulsion obtenue y est mesurée davantage à travers sa monodispersion ($P_w \leq 5\%$) qu'à travers la finesse de son diamètre moyen. Tout d'abord, le débit de la phase dispersée d'eau (Q_w) a peu d'influence sur la polydispersion (P_w). En effet dans les conditions présentes, à des nombres de Reynolds inférieurs à 2.5 l'inertie et la contrainte de cisaillement ne sont pas en mesure de s'opposer à la tension interfaciale. On signale ici que l'addition de butanol à l'huile ne diminue pas seulement la viscosité, mais également la tension interfaciale.

C'est plutôt le nombre capillaire Ca (Fig. latérale, Eq. 3.1), ratio des forces visqueuses (μV_d) sur la tension interfaciale $\sigma_{w/o}$, qui exerce une influence déterminante sur la polydispersion P_w : au-delà d'une valeur de 0.02, la polydispersion P_w franchit le seuil des 5%. [Zhao and Middelberg, 2011] avaient proposé la valeur-seuil de 0.01 jusqu'à laquelle un régime de type "droplet flow" (cf. Fig. 3.3) consiste en la prédominance de la force interfaciale sur les forces de cisaillement, d'où une bonne monodispersion de l'émulsion obtenue.

$$Ca = \frac{\mu V_d}{\sigma_{w/o}} \tag{3.1}$$

3. ÉCOULEMENTS MULTI-ÉCHELLES

55

CHAPITRE 3. INTENSIFICATION DE L'ÉMULSIFICATION, DU MÉLANGE ET DE L'ABSORPTION GAZ-LIQUIDE EN MINI-CANAL



FIGURE 3.4 – Polydispersion P_w de l'émulsion produite en fonction du ratio des débits eau/huile (Q_w/Q_o) dans le mini-canal à 16 jonctions en parallèle - Figure latérale : Polydispersion P_w en fonction du nombre capillaire Ca [Zhou et al., 2017].

Résumé sur l'émulsification

Les résultats obtenus nous donnent quelques conclusions marquantes résumées ci-après. Une étude complémentaire a également été réalisée sur ce sujet [Zhou et al., 2018] par simulation CFD.

- A l'issue des subdivisions multi-échelles du distributeur et du collecteur, l'objectif d'une émulsion homogène (polydispersion $P_w \leq 5\%$) est atteint. Comparativement à d'autres études de la littérature [Zhou et al., 2017], les performances d'émulsification sont comparables : gouttelettes autour d'1 mm, à un débit relativement important $(1.5 6 \ mL.min^{-1})$ et à des pertes de charge acceptables $(47 \ J.kg^{-1})$.
- Dans nos mini-canaux (section de 0.6 par 1 mm) et sous les conditions appliquées, le débit n'est pas vraiment influent sur cette polydispersion P_w tandis qu'une baisse de la tension interfaciale aggrave significativement la polydispersion. Ceci s'explique par la prépondérance de la tension interfaciale (cf. section 2) sur l'inertie.
- Le nombre capillaire Ca, ratio entre les forces d'inertie et les forces interfaciales, gouverne les régimes de rupture du filament [Zhao and Middelberg, 2011, De Menech et al., 2008] et exerce donc une influence prépondérante. De manière similaire, le nombre d'Ohnesorge Oh exerce aussi son influence [Zhou et al., 2017].

3.2 Mélangeur liquide-liquide

L'application des écoulements multi-échelles au procédé de mélange liquideliquide en mini-canaux [Tarlet et al., 2020] répond à des impératifs industriels propres aux mini-canaux tels que la maîtrise de réactions chimiques délicates [Woldemariam et al., 2016] ou la synthèse de nanomatériaux [Gunther et al., 2004], tout en bénéficiant de plusieurs données de départ :

- ils démultiplient naturellement l'aire de l'interface entre les deux liquides à mélanger,
- leur recombinaison dans le collecteur contribue à les mélanger encore davantage [Guo et al., 2013],
- La durée caractéristique de diffusion étant proportionnelle au carré de la distance de diffusion, la séparation de l'écoulement en n mini-canaux pourrait donc en raccourcir la durée d'un facteur n^2 [Erbacher et al., 1999, Suh and Kang, 2010].

En outre, la conception multi-échelles du distributeur et du collecteur garantit le même temps de séjour, et le même débit dans chacun des canaux [Yue et al., 2010]. La loi de Murray donne la taille des subdivisions successives, par similitude avec des réseaux vasculaires biologiques [Huang et al., 2009, Tondeur and Luo, 2004]. Autre imitation de l'architecture naturelle, un réseau maillé (partout une largeur de 1.1 mm et une profondeur de 1 mm) visible sur les Figs. 1.6 et 3.5 reproduit les fissures de la terre desséchée [Tondeur et al., 2011a, Tondeur et al., 2011b] pour multiplier à travers ses multiples collisions les rencontres entre les liquides à mélanger, cassant et recombinant plusieurs fois les couches-limites.

La Fig. 3.5 montre les mesures de concentration par absorption Beer-Lambert effectuées sur le réseau maillé. Tous les détails de cette technique se trouvent dans [Tarlet et al., 2020]. Au départ, un des deux liquides à mélanger est doté d'une concentration initiale en fluorescéine; un mélange idéal aboutirait à la mesure de la moitié de cette concentration initiale, de manière homogène sur l'ensemble de l'écoulement. On observe Fig. 3.5 la déviation d'une partie d'un écoulement vers l'autre, surtout au faible débit (4.3 mL.h^{-1} chacun) et de moins en moins quand les débits augmentent : au débit le plus élevé (18.8 mL.h⁻¹ chacun), aucun mélange significatif n'est observé le long du réseau maillé où cette déviation favorise efficacement le mélange.

Une comparaison est effectuée Fig. 3.5 (D) avec des canaux droits et séparés, où le mélange ne peut s'opérer qu'à travers la diffusion. Les liquides y progressent côte à côte, sans avoir eu le temps de se mélanger significativement avant la fin des canaux droits.

Pour favoriser le mélange, nous avons décidé de provoquer cette déviation de l'écoulement en augmentant la viscosité d'un des deux écoulements, l'incitant à se détourner vers l'autre dans les déviations successives du réseau maillé. De fait, nous avons observé un effet de déviation très significatif dès 0.25 % Vol. de glycérine. La Fig. 3.6 montre la progression de l'efficacité de mélange M_X (fonction du champ de concentration, Eq. 3.2 où \overline{C} est sa valeur moyenne) mesurée tout au long du réseau maillé. M_X serait égal à 1 dans le cas d'une concentration homogène partout, et il décroît avec les inhomogénéités du champ de concentration C_i .

À part l'écoulement avec 0.1% Vol. de glycérine, tous les cas excèdent la valeur $M_X = 0,85$ considérée comme indicatrice d'un mélange abouti [Ansari and Kim, 2010] [Afzal and Kim, 2015]. Dans les cas avec un fort écart de viscosité (2,5 % et

CHAPITRE 3. INTENSIFICATION DE L'ÉMULSIFICATION, DU MÉLANGE ET DE L'ABSORPTION GAZ-LIQUIDE EN MINI-CANAL

5 % de glycérine), la majeure partie du mélange s'opère à la première intersection, même si elle progresse un peu ensuite. La meilleure progression de M_X est celle observée pour 0.5 % de glycérine : son champ de concentration est inséré Fig. 3.6. Une déviation a lieu à la première intersection, et ensuite le mélange progresse jusqu'à devenir homogène à la fin du réseau maillé.

$$M_X = 1 - \frac{1}{\bar{C}} \left[\frac{\sum_{1}^{n} \left(C_i - \bar{C} \right)^2}{n} \right]^{\frac{1}{2}}$$
(3.2)

La Fig. 3.7 reprend l'efficacité de mélange M_X en fonction de l'indicateur Eq. 3.2. Celui-ci est formulé d'après deux facteurs favorisant le mélange : (i) le taux de cisaillement à l'intersection entre les deux écoulements à mélanger et (ii) la déviation de l'un vers l'autre, sachant qu'ils ont nécessairement le même débit (même vitesse débitante) au départ. La tendance obtenue est claire : le mélange s'améliore nettement jusqu'à atteindre un plateau à partir de $V_Q \times (\mu_1 - \mu_2) \simeq 3.10^{-9}$

$$V_Q \times (\mu_1 - \mu_2) \tag{3.3}$$

Résumé sur le mélange liquide-liquide

Sur la base des résultats obtenus, nous retenons ces principales conclusions :

- le principe d'un distributeur et d'un collecteur multi-échelles au début et à la fin d'un réseau maillé (écoulement de type *split-intersect-recombine*) est validé en mini-canal avec une efficacité de mélange optimale.
- -- la déviation d'un écoulement vers l'autre y est tout à fait déterminante, et efficace dès l'ajout de 0.5% Vol. de glycérine dans un des deux écoulements.
- un indicateur simple représentant un taux de cisaillement a montré son influence prépondérante, confirmée par une modélisation CFD d'une intersection du réseau maillée [Tarlet et al., 2020].



FIGURE 3.5 – Champs de concentration en [mg.L⁻¹]. L'écoulement va de gauche à droite. (A) : 4.3 mL.h⁻¹ chacun. (B) : 8.8 mL.h⁻¹ chacun. (C) : 18.8 mL.h⁻¹ chacun. (D) : Canaux témoins droits et séparés, 7.5 mL.h⁻¹ chacun.



FIGURE 3.6 – Progression de l'indice de mélange M_X tout au long du réseau maillé - débit : 10 mL.h⁻¹ chacun. Le champ de concentration inséré est le cas avec 0.5% vol. glycérine.



FIGURE 3.7 – Efficacité moyenne de mélange à travers le circuit maillé, avec deux liquides de viscosités différentes.

4 Emulsification à haute vitesse débitante

L'application énergétique d'une alimentation chaudière nous a poussés à explorer les ordres de grandeur supérieurs de débit (correspondant à la centaine de kW de puissance de flamme) sur le graphe Fig. 1.5 [Belkadi et al., 2015].

Pour opérer l'émulsification en mini-canal à ces vitesses débitantes plus rapides, nous y générons des structures d'écoulement de type *swirl* (tourbillonnant) à partir de la rencontre frontale (écoulement de type *impinging flow*) entre un canal d'huile de $600 \,\mu m$ et un canal d'eau moitié plus étroit, formant une "marche" de recirculation. Finalement l'émulsion produite sort par les deux autres issues du carrefour (Fig. 1.4 [Belkadi et al., 2015]). Les écoulements liquide-liquide généralement pratiqués en mini-canal sont laminaires avec des régimes d'émulsification de type "squeezing/dripping/jetting" régis par le nombre capillaire *Ca* [Zhao and Middelberg, 2011, Tice et al., 2004]. **Mais notre structure en** *swirl* **génère des taux de cisaillement élevés dans les trois dimensions, d'où une émulsification qui serait plus intense.** Ce type de structure d'écoulement tri-dimensionnelle est observé Fig. 3.8, particulièrement dans les écoulements (C) et (F) où le nombre de Reynolds est plus élevé.

Cherchant à prédire la taille des gouttelettes d'eau obtenues dans l'émulsification, nous avons écrit la conservation de l'énergie mécanique, c'est-à-dire de la pression totale considérée comme égale aux deux extrémités d'une ligne de courant (principe de Bernoulli). La pression totale P_1 (Eq. 3.4) règne au centre du carrefour où l'eau et l'huile se rencontrent, et P_2 en aval des deux autres canaux où s'en va l'émulsion. Les énergies cinétiques (i.e. les pressions dynamiques) s'additionnent dans le choc frontal, en plus de la pression statique P_s . Une fois l'émulsion produite, la pression de Laplace est incluse dans la pression en aval P_2 avec son diamètre moyen D_{-1} (décrit précisément dans [Belkadi et al., 2015]) qui est fait l'inverse de la moyenne des diamètres inverses dans l'émulsion.

$$\begin{cases}
P_1 = P_s + \frac{1}{2}\rho_o V_o^2 + \frac{1}{2}\rho_w V_w^2 \\
P_2 = P_s + 2 \times \frac{1}{2}\rho_e V_e^2 + \frac{4\sigma_{w-o}}{D_{-1}}
\end{cases}$$
(3.4)

Nous faisons l'hypothèse d'une perte de charge négligeable dans le court segment de mini-canal nécessaire à produire l'émulsion, d'où $P_1 = P_2$ (Eq. 3.5) :

$$\frac{1}{2} \rho_w V_w^2 + \frac{1}{2} \rho_o V_o^2 = \frac{4 \sigma_{w-o}}{D_{-1}} + 2 \times \frac{1}{2} \rho_e V_e^2 \longrightarrow [Pa]$$
(3.5)

Les termes de l'Eq. 3.5 sont ré-arrangés; on voit apparaître une vitesse équivalente V_{eq} : $V_{eq} = \sqrt{V_w^2 + \frac{\rho_o}{\rho_w} V_o^2 - 2 \frac{\rho_e}{\rho_w} V_e^2}$

$$\sqrt{V_w^2 + \frac{\rho_o}{\rho_w} V_o^2 - 2 \frac{\rho_e}{\rho_w} V_e^2} = \frac{\sqrt{8} \sigma_{w-o}}{\sqrt{D_{-1} \rho_w \sigma_{w-o}}} = Oh$$
(3.6)

L'Eq. 3.6 est finalement simplifiée pour obtenir l'Eq. 3.7 où on remarque un nombre capillaire équivalent Ca^* et un nombre d'Ohnesorge Oh. Le diamètre moyen D_{-1} de l'émulsion est issu de la pression de Laplace Eq. 3.4.

4. ÉMULSIFICATION À HAUTE VITESSE DÉBITANTE

61



FIGURE 3.8 – Structures d'écoulement eau-huile photographiées dans le mini-canal par la caméra LAVision high-speed avec : $Q_o = 80 + / -2 mL/min$ et une durée d'exposition de 1 μs - Colonne de gauche : $200 \times 800 \ \mu m$, (A) $Q_w = 3.1 \ mL/min$, (B) $Q_w = 9.57 \ mL/min$ (C) $Q_o = 76 \ mL/min$ avec 5% wt. Butanol, $Q_w = 14 \ mL/min$ - Colonne de droite : (D) $300 \times 800 \ \mu m$ with $Q_w = 4.95 \ mL/min$ - (E) et (F) : $300 \times 600 \ \mu m$ avec (E) $Q_w = 5 \ mL/min$ (F) $Q_w = 13 \ mL/min$.

$$\frac{\mu_o \, V_{eq}}{\sigma_{w-o}} = C a^* = \sqrt{8} \, \frac{\mu_o}{\sqrt{D_{-1} \, \rho_w \, \sigma_{w-o}}} \tag{3.7}$$

D'où cette relation linéaire entre les nombres adimensionnels Ca^* et Oh (Eq. 3.8). Un accord satisfaisant avec les données expérimentales est observé dans la figure annexe Fig. 3.9, sauf pour les écoulements avec 13% Vol. de Butanol qui ont une viscosité diminuée de 42% et une tension superficielle abaissée de 80%. Il est probable que ces écoulements soient plus désordonnés, d'où un bilan d'énergie plus erratique. Cette prédiction efficace du diamètre obtenu dans l'émulsion nous permet en outre de vérifier que l'émulsification résulte bien de l'écoulement, et pas d'impondérables expérimentaux comme les vibrations ou la rugosité des canaux.

$$Ca^* = \sqrt{8} Oh \tag{3.8}$$

L'analyse dimensionnelle est également pratiquée Eq. 3.9 avec plusieurs groupements adimensionnels parmi lesquels le nombre capillaire exerce une influence majoritaire sur l'émulsification avec son exposant 0.68. L'analyse dimensionnelle est appropriée pour ce type de procédés en continu : on obtient suffisamment de données expérimentales par rapport auxquelles on minimise l'écart.

$$Oh^* = 0.1 \left(\frac{V_o \,\mu_o}{\sigma_{w-o}}\right)^{0.68} \left(\frac{\mu_o}{\mu_w}\right)^{0.53} \left(\frac{Q_w}{Q_w+Q_o}\right)^{0.1} \tag{3.9}$$

En collaboration avec Thibaut Ménard (CORIA Rouen UMR CNRS 6614), une simulation numérique de type Level-set [Desjonqueres et al., 2017] est comparée qualitativement à des prises de vue expérimentales Fig. 3.10. On y constate que ces cas simulés dans un mini-canal $300 \times 600 \ \mu m$ sont comparables sur un plan qualitatif aux images de la Fig. 3.8, en particulier l'allure courbée de l'interface eau/huile à de faibles débits d'eau, et le détachement de ce qui semble des structures turbulentes à des débits plus élevés.

Résumé sur l'émulsification à haute vitesse débitante

À l'issue de ces études menées à des débits supérieurs de 3 ordres de grandeur au reste de la littérature (cf. Fig. 1.5), voici quelques conclusions majeures :

- Notre écoulement en "swirl" généré au sortir de la marche s'avère optimal aux dimensions $300 \times 600 \,\mu m$ pour les conditions testées dans le mini-canal.
- Des modélisations globales et simples tels que (i) la conservation de l'énergie mécanique et (ii) l'analyse dimensionnelle s'avèrent pertinentes avec de faibles écarts par rapport aux mesures expérimentales.
- Une étude complémentaire fondée sur l'extinction d'un faisceau laser à travers le mini-canal [Belkadi et al., 2015] a révélé l'étendue de la zone de l'émulsification proprement dite : 2 à 3 mm.
- Une modélisation CFD de type *Level-set*, appropriée à ces hautes vitesses de rupture des filaments comme elle l'est habituellement pour des injections moteur, donne des écoulements qualitativement comparables à nos expériences.



FIGURE 3.9 – Comparaison de Oh^* (Eq. 3.9) avec l'Ohnesorge expérimental Oh dans le mini-canal $300 \times 600 \mu m$ "impinging flow". La conservation de l'énergie mécanique $Ca^* = \sqrt{8} Oh$ (Eq. 3.8) est aussi comparée aux données expérimentales, dans la figure annexe.



FIGURE 3.10 – Simulations numériques (Level-set) des structures d'écoulement eauhuile dans le mini-canal $300 \times 600 \,\mu m$ [Desjonqueres et al., 2017] avec (cas A, B et C de haut en bas) : (A) huile pure $Q_o = 72.55 \,mL/min$, $Q_w = 6.94 \,mL/min$, (B) huile + 0.3% wt. SPAN 83 $Q_o = 62.84 \,mL/min$, $Q_w = 9.06 \,mL/min$, (C) huile + 5% wt. Butanol $Q_o = 76.23 \,mL/min$, $Q_w = 13.85 \,mL/min$

4. ÉMULSIFICATION À HAUTE VITESSE DÉBITANTE

5 Absorption chimique du CO_2 en mini-canal

Notre problématique est d'intensifier l'absorption chimique du CO_2 dans une solution de monoéthanolamine (MEA) en mini-canal; pour ce faire, nous agissons sur la géométrie bordant l'écoulement y compris par des chicanes internes. L'écoulement doit déformer de manière cyclique les interfaces gaz-liquide, dans le but d'y accélérer le transport des espèces chimiques. La cinétique chimique d'absorption du CO_2 dans la solution liquide de monoéthanolamine (MEA) a été documentée par [Lv et al., 2015]; elle est considérée comme assez rapide pour considérer comme nulle la concentration du CO_2 dissous [Cheng et al., 2023b]. Un avantage du MEA est aussi sa capacité à des cycles répétés d'absorption/désorption du CO_2 [Yanase et al., 2017].

Mais dans notre canal millimétrique, cette intensification ne doit pas trop augmenter les pertes de charge. Le critère de [Li et al., 2019a] est le ratio μ (Eq. 3.10) de l'amélioration $E_{1,2}$ du taux global de réaction $k_L a$ entre les situations 1 et 2 sur le rapport des consommations énergétiques (pertes de charge) dans les situations 1 et 2.

$$\mu = \frac{E_{1,2}}{E_{c,2}/E_{c,1}} \tag{3.10}$$

D'autres ont testé plusieurs topologies d'écoulement : sillons "heart-shaped grooves" [Chen et al., 2021], parcours "split-and-recombine" [Yin et al., 2022], écoulement à brusques expansions successives [Zhang et al., 2021], etc. Nous avons choisi d'intensifier le principe de chicanes alternatives en 2-D (virages dans le même plan [Yin et al., 2019]) en disposant les chicanes alternativement pour former un écoulement de type tri-dimensionnel ("swirl" 3-D, Fig. 3.11). Ainsi le taux de cisaillement $\mu \frac{\partial u_i}{\partial x_i}$ est-il intensifié dans une troisième composante *i*, en plus des deux premières.



FIGURE 3.11 – Installation, mini-canal $1 \times 1 mm$, chicanes "swirl" de 500 μm [Cheng et al., 2023b].

Dans la plupart des débits testés, on observe un régime de type "slug flow" raccourcissant en bulles "bubble flow" du fait de la réaction chimique [Cheng et al.,

5. ABSORPTION CHIMIQUE DU CO_2 EN MINI-CANAL

CHAPITRE 3. INTENSIFICATION DE L'ÉMULSIFICATION, DU MÉLANGE ET DE L'ABSORPTION GAZ-LIQUIDE EN MINI-CANAL

2023b]. La déformation dynamique des interfaces gaz-liquide sur les chicanes est observée Fig. 3.12; par rapport au même canal lisse on observe plutôt un raccourcissement des bulles ("slugs") dû à une accélération de la consommation chimique du CO_2 qu'un réel fractionnement de celles-ci. Le transfert a surtout lieu près des extrémités des bulles (*spherical caps*) où on suppose qu'un **écoulement secondaire** prend naissance du fait des chicanes. Les pertes de charge mesurées sont entre 500 et 750 Pa; leur accroissement dû à l'ajout de chicanes reste inférieur à 50 Pa. Ce niveau de pertes de charge est considéré comme acceptable pour une application industrielle.



 $Q_G: 168ml/h; Q_L: 30ml/h; C_{MEA}: 1\%$

FIGURE 3.12 – Bulles de CO_2 à travers nos chicanes "swirl" [Cheng et al., 2023b] - mini-canal $1 \times 1 mm$, chicanes de 500 μm .

Le taux de réaction ${}^1 k_L a$ quantifie nos résultats en terme d'intensification du procédé d'absorption chimique du CO_2 , le ratio E ("Enhancement number") exprimant le taux de réaction obtenu avec les chicanes divisé par celui obtenu dans le canal lisse. On constate Fig. 3.13 l'amélioration significative (de l'ordre de 10-20%) apportée par les chicanes disposées en "swirl" tridimensionnel, et ce dans une large gamme de nombres de Reynolds du $CO_2 Re_G$ et de la solution liquide Re_L .

Ce changement radical de la géométrie bordant l'écoulement nous amène à un questionnement plus poussé sur des travaux d'optimisation : en effet, si des chicanes rectangulaires larges comme la moitié du canal et disposées selon la longueur constatée des bulles ("slugs") nous valent déjà une telle amélioration, alors quel serait le bénéfice d'une optimisation raffinée [Thevenin and Janiga, 2008] de la géométrie de l'écoulement à l'aide de simulations CFD préalablement validées par rapport à ces résultats expérimentaux, et qui tiendrait compte des pertes de charge? Cela vise à optimiser le critère μ qui tient compte de cet équilibre (Eq. 3.10).

Résumé sur l'absorption du CO₂ en mini-canal

- Une intensification du taux d'absorption de l'ordre de 10 à 20% a été obtenue grâce à l'ajout de chicanes générant un écoulement "swirl" tridimensionnel; déformer dynamiquement l'interface gaz-liquide dans les 3 dimensions s'est avéré une stratégie valable.
- Dans le mini-canal, le régime d'écoulement est naturellement du type "slug flow" se raccourcissant vers des bulles sphériques plus petites du fait de l'absorption chimique. Les chicanes raccourcissent les bulles plus rapidement,

^{1. &}quot;Overall liquid side volumetric mass transfer rate" : $k_L a \longrightarrow [s^{-1}]$

^{5.} ABSORPTION CHIMIQUE DU CO_2 EN MINI-CANAL



FIGURE 3.13 – Intensification du procédé de capture de CO_2 [Cheng et al., 2023b].

mais ne les "rompent" généralement pas 2 .

6 Conclusion et perspectives

Ces travaux sur l'intensification de différents types de transfert de masse en mini-canaux amènent les conclusions suivantes :

- Déformer les interfaces, augmenter le taux de cisaillement $\mu \frac{\partial u_i}{\partial x_i}$ participe à intensifier le transfert, que ce soit vis-à-vis du mélange (différence de viscosité), de l'émulsification (écoulement "swirl" rapide), ou de l'absorption du CO_2 (disposition de chicanes). Vis-à-vis de la conception de nos mini-canaux, l'enjeu serait de l'augmenter sans le payer de trop de pertes de charge³.
- L'avantage de la conception multi-échelles (offrir le même débit dans plusieurs mini-canaux issus de subdivisions) permet de réellement opérer du *numbering-up*, démultipliant le débit traité par un seul composant tout en maintenant l'avantage du mini-canal individuel.
- L'intensification de l'absorption du CO₂ aux extrémités des bulles (spherical caps) par un écoulement secondaire dans la zone liquide attenante nous amène à y pousser nos investigations, en mesurant simultanément dans cette zone (i) le taux d'absorption, (ii) le champ de vitesse, et (iii) le champ de PH.

^{2.} Provoquer une "rupture" des bulles de CO_2 serait le fait d'un autre type de géométrie.

^{3.} sur le long terme, cette optimisation peut s'accompagner d'une campagne d'optimisation CFD.

Chapitre 4 Conclusions et perspectives

Ce chapitre reprend les découvertes majeures retenues des nos travaux sur l'intensification des transferts de chaleur et de masse, (i) dans la goutte d'émulsion jusqu'à sa micro explosion et (ii) dans les procédés liquide-liquide et gaz-liquide en mini-canaux. Sur la base de cette expérience accumulée, plusieurs perspectives à court terme (le prochain montage expérimental cette année) ou plus lointaines (le prochain sujet de thèse de doctorat à proposer) sont exposées, esquissant notre positionnement dans l'écosystème de la recherche académique.

1 Nos principales avancées en quelques mots

Sur la micro explosion, à la suite d'Ernesto Mura (2011) qui avait déterminé une formulation optimale de l'émulsion, nous avons confirmé que la coalescence de l'eau interne est une condition importante pour la micro explosion optimale, et que les statistiques sur la population des gouttes-filles (distributions log-normales) portent des enseignements sur l'atomisation qui les a générées. Bénéficiant d'assez de moyens d'investigation à l'intérieur de la goutte, nous avons démontré l'importance de la mobilité des gouttelettes d'eau internes, de leur énergie thermique accumulée tout au long de leur histoire thermo-mécanique, également au travers de la coalescence. L'influence du mode de transfert subi (convectif et / ou radiatif) s'avère déterminante, dès lors qu'il favorise la coalescence à travers l'allure de la convection interne.

Sur l'intensification des transferts dans les procédés en mini-canal, à travers différentes applications tant liquide-liquide que gaz-liquide, nous avons confirmé l'intérêt de ces deux approches fondées sur la géométrie de l'écoulement : (i) augmenter le taux de cisaillement (*shear stress*), déformer les interfaces liquideliquide ou gaz-liquide, rompre les couches-limites et (ii) accroître le débit traité par la conception multi-échelles.

2 Envisager l'avenir

En plus d'être pertinente scientifiquement, une bonne proposition de projet tient compte de l'écosystème des laboratoires, de l'historique des carrières et des compétences, de l'application réaliste d'outils disponibles, et de la valorisation ultime des applications.

Le LTeN demeure un laboratoire à dominante expérimentale; la première action structurante (peu coûteuse à vrai dire) consiste à mettre en ligne nos banques de données expérimentales, pour que d'autres équipes de modélisation / simulation puissent comparer / valider leurs résultats. Beaucoup d'images saisies par nos caméras à haute résolution :

- goutte d'émulsion chauffée s'acheminant vers sa micro explosion (ou pas!),
- bulle de CO_2 déformée au passage d'une chicane, voyant son absorption chimique accélérée au passage.

attireraient leur attention. La collaboration pérenne, d'équipe à équipe, qui en serait issue permettrait de croiser le théorique et l'expérimental. C'est immanquablement une voie de progrès scientifique; un second axe de travail consisterait à concevoir, à travers une campagne d'optimisation CFD, des géométries optimales de procédés en mini-canaux au sens de l'augmentation du taux de cisaillement sans trop de perte de charge. Nous validerions cette géométrie par nos moyens expérimentaux.

Localement, l'IRT Jules Verne [Agyeman et al., 2022], qui a déjà envoyé une équipe visiter nos salles expérimentales, pourrait y contribuer. On pense aussi à l'IMFT de Toulouse (UMR 5502) surtout en sa composante "Interfaces", et au CO-RIA (UMR 6614) de Rouen.

2.1 Micro explosion de la goutte d'émulsion

Structurer l'étude en ce domaine, c'est distinguer les paramètres tant internes (structure initiale de l'émulsion, etc.) qu'externes (mode de transfert thermique subi, etc.) menant éventuellement à la micro explosion optimale. À l'heure de la raréfaction des combustibles fossiles, la valorisation énergétique de déchets huileux exigera de connaître la formulation optimale du procédé vis-à-vis de son impact écologique.

La collaboration avec nos collègues russes de Tomsk [Antonov et al., 2020a] est interrompue à ce jour; celle avec le CNR de Naples (Italie) se poursuit concernant notamment les diagnostics optiques. Voici les sujets identifiés comme étant à approfondir, vers la connaissance scientifique et la maîtrise industrielle de ce type de combustion (* = niveau de difficulté) :

- Statistiques parmi les gouttes-filles (***) : l'allure des distributions observées en énergie, vitesse etc. ainsi que leur part du bilan mécanique ("avant/après") de la micro explosion seraient issues de moyens d'investigations rôdés sur les sprays. Les équipes du CORIA (UMR 6614) ont une solide expérience dans ce domaine [Dumouchel et al., 2009].
- Généalogie de la micro explosion optimale (**) : , identifier les faits qui la garantissent, tant dans la formulation initiale de la goutte d'émulsion qu'au cours de son histoire thermo-mécanique. La coalescence s'avère cruciale, elle résulte de nombreux paramètres (avec là aussi un caractère stochastique, observé à travers sa reproductibilité). Tester aussi des combustibles alternatifs issus de la valorisation de déchets (cf. industrie agro-alimentaire dans l'ouest de la France [Kumar et al., 2006a]).
- Influence du mode de transfert thermique subi (*) : Le dosage entre radiatif

et convectif représente l'application dans un spray en combustion, il favorise donc l'extrapolation de nos expériences à l'application industrielle. Au LTeN nous sommes compétents sur la conception de l'installation expérimentale chauffante, et le laboratoire ICARE UPR 3021 d'Orléans a beaucoup travaillé sur une goutte individuelle de combustible [Halter et al., 2020]. Le transfert convectif ("drop tower") pourrait être maîtrisé plus précisément en laboratoire.

— comparaison à des modèles (***) : Même si la désintégration elle-même dure moins d'une milliseconde, nos expériences durent de l'ordre de la seconde. Un modèle devrait demeurer pertinent à de hautes valeurs de vitesse et de taux de cisaillement. Les conditions aux limites de la goutte chauffée, parfois mouvante et oscillante, ne sont pas aisément déterminées. Mais en raison des explications qu'ils peuvent amener, nous demeurons ouverts à des comparaisons à des modèles ou des simulations CFD¹ [Shinjo et al., 2014, Castanet et al., 2023, Bremond and Bibette, 2012a, Limare et al., 2023].

2.2 Intensification des transferts dans les procédés en minicanaux

Dans le prolongement de notre expérience accumulée, au travers d'un Partenariat Hubert Curien (PHC) France/Chine 2020 et d'un autre en cours de montage pour 2024, voici les sujets identifiés comme pertinents :

- Augmenter le taux de cisaillement : Tracer des lignes de courant "swirl" tridimensionnelles (ou en réseau maillé) ou encore accélérer le débit 3 ordres de grandeur au-delà de la pratique répandue dans la littérature s'est avéré une stratégie gagnante. Nous envisageons d'agiter et/ou de rompre davantage les couches-limites, les interfaces gaz-liquide ou liquide-liquide par le tracé bordant l'écoulement, dans le cadre d'un arbitrage avec des pertes de charge minimales².
- Conception multi-échelle : La mise en parallèle (numbering-up) nous rapproche des applications à l'échelle industrielle. Ainsi la capture de CO_2 serait pratiquée sur des installations-pilotes de procédés de traitement du calcaire (chaux) chez des partenaires allemands et italiens [Coppola et al., 2023, Marx et al., 2023] avec qui nous envisageons pour 2025 un projet européen Clean Energy Transition Partnership (CETP) "Transition Initiative" (TRI.3) Neutralité carbone (CCUS). Ce projet étend le champ d'application de nos minicanaux à l'échelle industrielle.
- Jouer sur la nature des réactifs : D'autres solvants que le MEA, aux propriétés plus écologiques, pourraient le remplacer dans l'absorption chimique du CO_2 . En outre, l'émulsification en mini-canal permettrait d'intégrer plus efficacement du matériau à changement de phase (fluide PCM) sous forme de granulés pour des applications de stockage d'énergie.

^{1.} Le Laboratoire colloïdes et matériaux divisés (LCMD) à l'ESPCI parisienne, l'équipe "Physico-chimie et dynamique des surfaces" de l'Institut des Nanosciences de Paris (INSP), l'équipe CFD autour de Stéphane Popinet à l'Institut Jean Le Rond D'Alembert UMR 7190 pourraient nous y aider.

^{2.} Les moyens du LTeN (imprimante 3D avec CAO, etc.) nous y aident déjà.

^{2.} ENVISAGER L'AVENIR
- Étendre en aval l'étude du procédé : Suite à la capture du CO_2 , sa régénération ultérieure (désorption du CO_2 [Yanase et al., 2017]) alimente par exemple des serres pour la photosynthèse. Localement, le Centre Technique Interprofessionnel des Fruits et Légumes ³ a déjà envoyé une équipe visiter notre laboratoire et nous questionner à ce sujet. Suite à la régénération (désorption) du CO_2 , d'autres procédés sont souvent cités : combustibles de synthèse, engrais.
- <u>Confrontation à des simulations CFD :</u> Comme évoqué plus haut, il est à noter que les mini-canaux, avec leurs conditions aux limites et leur écoulement maîtrisés, se prêtent particulièrement bien à la validation de modèle par des équipes compétentes (cf. Fig. 3.10 [Desjonqueres et al., 2017]). Pour la conception de ces mini-canaux, une campagne d'optimisation CFD avec des partenaires européens identifiés [Thevenin and Janiga, 2008] arbitrerait plus précisément entre la maximisation du taux de cisaillement, l'intensification des transferts aux interfaces (*two-phase interface disturbance*) et la plus faible augmentation possible des pertes de charges.

3 Bibliométrie personnelle

Période	Articles RICL	Citations $(*)$	h-index
2009 - 2023	36	562	15
Actes de conférences internationales		Actes de conférences nationales	
19		12	
Ouvrages collectifs			
2		(*): hors auto-citations.	

Situation à la date du 16/06/2023 (Scopus) :

Revues internationales (RICL)

[1] V. Chataigner, D. Tarlet, F. Ricoul, J. Bellettre, Experimental and theoretical study of heat and mass transfer in a continuous, vertical and coaxial pyrolysis reactor for high porosity biochar production, *Fuel*, Volume 351, 2023, 128848, ISSN 0016-2361.

[2] T. Naudin, D. Tarlet, R. Calabria, P. Massoli, J. Bellettre. Does internal convection promote micro-explosion of w/o emulsion droplets? *Atomization and Sprays* 33(9) :15-34, 2023.

[3] H. Cheng, D. Tarlet, Y. Fan, L. Luo, Mass transfer enhancement for CO_2 chemical absorption in a spiral baffle embedded microchannel. *Chemical Engineering Science*, Vol. 280, 2023.

[4] H. Cheng, Y. Fan, D. Tarlet, L. Luo, Z. Fan, Microfluidic-based Chemical Absorption Technology for Carbon Dioxide Capture : Dynamics, Performance, and Future Prospects. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, Vol. 181, 113357, 2023.

^{3.} CTIFL, https://www.ctifl.fr/

[5] P. Strizhak, R. Volkov, O. Moussa, D. Tarlet, J. Bellettre, Convection velocities in gas and liquid phases during fragmentation of droplets, *Experimental Thermal* and Fluid Science, Volume 129, 2021, 110476, ISSN 0894-1777.

[6] P. Strizhak, R. Volkov, O. Moussa, D. Tarlet, J. Bellettre, Child droplets from micro-explosion of emulsion and immiscible two-component droplets, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Volume 169, 2021, 120931, ISSN 0017-9310.

[7] M. Hamdi, O. Rouaud, D. Tarlet, M. Havet, Experimental investigation on convective heat transfer enhancement by EHD in wire to plate configuration, *Thermal Science and Engineering Progress*, Volume 26, 2021, 101086, ISSN 2451-9049,

[8] P. Strizhak, R. Volkov, O. Moussa, D. Tarlet, J. Bellettre, Comparison of microexplosive fragmentation regimes and characteristics of two- and three-component droplets on a heated substrate, *International Journal of Heat and Mass Transfer*, Volume 179, 2021, 121651, ISSN 0017-9310,

[9] D. Antonov, M. Piskunov, P. Strizhak, D. Tarlet, J. Bellettre (2020). Dispersed phase structure and micro-explosion behavior under different schemes of water-fuel droplets heating. *Fuel*, 259 :116241.

[10] D. Antonov, N. Shlegel, P. Strizhak, D. Tarlet, J. Bellettre (2020). Energy analysis of secondary droplet atomization schemes. *International Communications in Heat and Mass Transfer*, 117 :104666.

[11] O. Moussa, D. Tarlet, P. Massoli, J. Bellettre (2020). Investigation on the conditions leading to the micro-explosion of emulsified fuel droplet using two colors lif method. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 116 :110106.

[12] D. Tarlet, Y. Fan, L. Luo (2020). Design and mixing performance characterization of a mini-channel mixer with nature-inspired geometries. *Chemical Engineering Research and Design*, 164 :230–239.

[13] P. Strizhak, R. Volkov, O. Moussa, D. Tarlet, J. Bellettre (2020). Measuring temperature of emulsion and immiscible two-component drops until micro-explosion using two-color lif. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 163 :120505.

[14] N. Shlegel, P. Strizhak, D. Tarlet, J. Bellettre (2019). Comparing the integral characteristics of secondary droplet atomization under different situations. *International Communications in Heat and Mass Transfer*, 108 :104329.

[15] O. Moussa, D. Tarlet, P. Massoli, J. Bellettre. Insight of a water-in-oil emulsion drop under Leidenfrost heating using Laser-Induced Fluorescence optical diagnostics, *Atomization & Sprays*, 29(1) :1-17, 2019,

[16] D. Tarlet, E. Younes, S. Roux, A. Levy, T. Burghelea, Stopping of a solid object in an elasto viscoplastic material, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, Volume 263, 2019, Pages 120-129, ISSN 0377-0257,

[17] T. Guewouo, L. Luo, D. Tarlet, M. Tazerout, Identification of Optimal Parameters for a Small-Scale Compressed-Air Energy Storage System Using Real Coded Genetic Algorithm. *Energies* 2019, 12, 377.

[18] D. Antonov, J. Bellettre, D. Tarlet, P. Massoli, O. Vysokomornaya, M. Pisku-

nov , Impact of Holder Materials on the Heating and Explosive Breakup of Two-Component Droplets, *Energies* 2018, 11(12), 3307;

[19] E.A. Melo-Espinosa, J. Bellettre, D. Tarlet, A. Montillet, R. Piloto-Rodriguez, S. Verhelst (2018). Experimental investigation of emulsified fuels produced with a micro-channel emulsifier : Puffing and micro-explosion analyses. *Fuel*, 219 :320–330.

[20] O. Moussa, D. Tarlet, P. Massoli, J. Bellettre (2018) Parametric study of the micro-explosion occurrence of w/o emulsions. *International Journal of Thermal Sciences*, 133 :90–97.

[21] P. Zhou, D. Tarlet, Y. Fan, X. Hu, L. Luo (2018). Water-in-oil emulsification in a bifurcated tree-like network : Flow distribution properties and their impact on the emulsion polydispersity. *Chemical Engineering Research and Design*, 134 :420–433.

[22] P. Zhou, D. Tarlet, M. Wei, Y. Fan, L. Luo (2017) Novel multi-scale parallel mini-channel contactor for monodisperse water-in-oil emulsification. *Chemical Engineering Research and Design*, 121 :233–244.

[23] A. Belkadi, D. Tarlet, A. Montillet, J. Bellettre, P. Massoli (2016). Study of two impinging flow microsystems arranged in series. application to emulsified biofuel production. *Fuel*, 170 :185–196.

[24] D. Tarlet, C. Allouis, J. Bellettre (2016) The balance between surface and kinetic energies within an optimal micro-explosion. *International Journal of Thermal Sciences*, 107 :179–183.

[25] D. Tarlet, C. Josset, J. Bellettre (2016). Comparison between unique and coalesced water drops in micro-explosions scanned by differential calorimetry. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 95:689–692.

[26] A. Belkadi, D. Tarlet, A. Montillet, J. Bellettre, P. Massoli (2015) Waterin-oil emulsification in a microfluidic impinging flow at high capillary numbers. *International Journal of Multiphase Flow*, 72 :11–23.

[27] M. Hamdi, M. Havet, O. Rouaud, D. Tarlet, Comparison of different tracers for PIV measurements in EHD airflow. *Experiments in Fluids*, 55, 1702 (2014).

[28] D. Tarlet, E. Mura, C. Josset, J. Bellettre, C. Allouis, P. Massoli (2014) Distribution of thermal energy of child-droplets issued from an optimal micro-explosion. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 77 :1043–1054.

[29] D. Tarlet, Y. Fan, S. Roux, L. Luo, Entropy generation analysis of a mini heat exchanger for heat transfer intensification, *Experimental Thermal and Fluid Science*, Volume 53, Pages 119-126, ISSN 0894-1777, 2014.

[30] D. Damiani, D. Tarlet, E. Meillot, A Particle-Tracking-Velocimetry (PTV) Investigation in a DC Plasma Jet, *Journal of Thermal Spray Technology* Vol. 23, No. 3, 2014.

[31] A. Belkadi, D. Tarlet, A. Montillet, J. Bellettre, P. Massoli, Optical diagnostics for W/O emulsification within impinging flow and right angle mini-channel, *La Houille Blanche - International Water Journal* Vol. 2, pp. 52-59, 2013.

[32] D. Tarlet, C. Bendicks, C. Roloff, R. Bordás, B. Wunderlich, B. Michaelis, D. Thévenin, Gas Flow Measurements by 3D Particle Tracking Velocimetry Using

Coloured Tracer Particles Flow, Turbulence and Combustion Vol. 88, No. 3, 2012.

[33] C. Bendicks, D. Tarlet, C. Roloff, R. Bordás, B. Wunderlich, B. Michaelis and D. Thévenin, Improved 3-D Particle Tracking Velocimetry with Colored Particles, *Journal of Signal and Information Processing*, Vol. 2 No. 2, 2011, pp. 59-71.

[34] D. Tarlet, J. Bellettre, M. Tazerout, C. Rahmouni, Formulation and Combustion of Emulsified Fuel : The Changes in Emission of Carbonaceous Residue, *International Journal of Energy Research* Vol. 34 – 2010, pp. 688-694.

[35] D. Tarlet, J. Bellettre, M. Tazerout, C. Rahmouni, Numerical comparison of spray combustion between raw Fuel and water-in-oil emulsified Fuel, *International Journal of Spray and Combustion Dynamics* Vol. 2 - 2010, pp. 1-10.

[36] D. Tarlet, J. Bellettre, M. Tazerout, C. Rahmouni, A validated prediction of micro-explosion delay of emulsified fuel droplets in the case of homogeneous nucleation, *International Journal of Thermal Science* Vol. 48 - 2009, pp. 449-460.

Actes de congrès internationaux

[0] T. Naudin, D. Tarlet, R. Calabria, P. Massoli, J. Bellettre, Planar 2 Colors-LIF technique applied to temperature measurements within hydrocarbon droplets, ILASS Europe 2023, 32nd European Conference on Liquid Atomization & Spray Systems, 4-7 Sept 2023, Napoli, Italy (*Communication soumise en juin 2023*)

[1] T. Naudin, D. Tarlet, R. Calabria, P. Massoli, and J. Bellettre Experimental Study Of Emulsion Dispersed Phase Temperature Under Radiant Heating using 2-c LTF Method, 12th Mediterranean Combustion Symposium (MCS-12), Louxor (Egypte) 22-26 Janvier 2023 (présentation orale en anglais)

[2] T. Naudin, D. Tarlet, R. Calabria, P. Massoli, J. Bellettre (2022) Experimental study of water-in-oil droplet micro-explosion using lif measurements : effect of radiative heating configuration. ILASS Americas 32nd Annual Conference on Liquid Atomization and Spray Systems. (présentation orale en anglais)

[3] O. Moussa, D.Tarlet, P.Massoli et J.Bellettre. Temperature measurements of water embedded droplets using 2cLIF technique, 11th Mediteraneen Combustion Symposium, Tenerife, Espagne, 16-20 Juin 2019. (*Poster*)

[4] O. Moussa, D.Francelino, D.Tarlet, P.Massoli et J.Bellettre. Micro-explosion characterization using optical diagnostics during the heating of W/O emulsion droplets, International Conference on Liquid Atomization and Spray Systems (ICLASS), Chicago IL, USA, 22-26 Juillet 2018.

[5] O. Moussa, D.Tarlet, P.Massoli et J.Bellettre. Fluorescence visualization of water droplets in W/O emulsions, 10th Mediteraneen Combustion Symposium, Naples, Italie, 17-21 Septembre 2017. (*Poster*)

[6] O. Moussa, D.Tarlet, P.Massoli et J.Bellettre. Parametric study of the microexplosion occurrence of W/O emulsions, 10th Mediteraneen Combustion Symposium, Naples, Italie, 17-21 Septembre 2017. (*Poster*)

[7] P. Desjonqueres, T. Menard, D. Tarlet, J. Bellettre (2017) Comparison between numerical and experimental water-in-oil dispersion in a microchannel. ILASS Conference 2017, Valencia, 1.

[8] E.A. Melo Espinosa, J. Bellettre, D. Tarlet, R. Piloto-Rodriguez, S. Verhelst (2017) Experimental investigation on puffing and micro-explosion occurence of water in rapeseed oil emulsion droplets : effect of the surfactant concentration. 28th Conference on Liquid Atomization and Spray Systems, ILASS-EUROPE 2017. Presented at the 28th European Conference on Liquid Atomization and Spray Systems, CMT-Motores Termicos - Politecnica de Valencia.

[9] D. Tarlet, C. Josset, J. Bellettre, Experimental study of water coalescence prior to micro-explosion, ILASS – Europe 2016, 27th Annual Conference on Liquid Atomization and Spray Systems, Sept. 2016, Brighton, UK.

[10] M. Hamdi, M. Havet, O. Rouaud, D. Tarlet, 'Experimental investigation on convective heat transfer enhancement by EHD', Proceedings of the 16th International Symposium on Transport Phenomena and Dynamics of Rotating Machinery – ISROMAC 2016, Honolulu, USA, 2016.

[11] O. Rouaud, M. Hamdi, E. Bardy, D. Tarlet, M. Havet. Drying enhancement due to ionic wind in a wire to plate configuration. the 12th International Congress on Engineering and Food, (ICEF12), Jun 2015, Québec-City, Canada. (*Poster*)

[12] A. Belkadi, D. Tarlet, A. Montillet, J. Bellettre, P. Massoli, Measurement of collected polarised light across a liquid-liquid extension flow, 10th International Conference on Laser Light and Interaction with Particles, Marseille, France, 2014.

[13] D. Tarlet, C. Allouis, J. Bellettre, The balance between surface and kinetic energies within an optimal micro-explosion, ILASS – Europe 2014, 26th Annual Conference on Liquid Atomization and Spray Systems, 8-10 Sept. 2014, Bremen, Germany.

[14] D. Tarlet, A. Dejean, J. Bellettre, C. Allouis, P. Massoli, Temperature distribution of daughter-droplets issued from three different micro-explosions, 8th World Conference on Experimental Heat Transfer, Fluid Mechanics, and Thermodynamics (ExHFT-8), 2013, Lisbon, Portugal.

[15] A. Belkadi, A. Montillet J. Bellettre P. Massoli, D. Tarlet. "High-speed w/o emulsification within impinging and cross-flowing minichannels." Proceedings of the 3rd European Conférence on Microfluidics . Heidelberg, Germany, 2012.

[16] D. Tarlet, C. Bendicks, R. Bordàs, B. Wunderlich, D. Thévenin, B. Michaelis, 3-D Particle Tracking Velocimetry (3-D PTV) in gas flows using coloured tracer particles, 12th European Turbulence Conference, Marburg (Allemagne), 7-10 Septembre 2009.

[17] D. Tarlet, J. Bellettre, M. Tazerout, C. Rahmouni, A comparison between spray combustion simulations of raw and water-in-oil emulsified fuel, Fifth Mediterranean Combustion Symposium (MCS-5), Monastir, Tunisia, 9-13 September 2007 (CD-ROM).

[18] D.Tarlet, J. Bellettre, M. Tazerout, C. Rahmouni, « A criterion for prediction of micro-explosion delay of water-in-fuel emulsion droplet ». Fourth Mediterranean Combustion Symposium (MCS4), 6-10 octobre 2005, Lisbonne, Portugal (présentation orale en anglais)

[19] D. Tarlet, J. Bellettre, M. Tazerout, C. Rahmouni, Numerical study of microexplosion delay of water-in-oil emulsion droplet, 18th Int. Conf. on Efficiency, Cost,

Optimization, Simulation and Environmental Impact of Energy Systems (ECOS) 2005 Trondheim (Norvège), pp.237-242.

Actes de congrès nationaux

[1] T. Naudin, D. Tarlet, J. Bellettre, P. Massoli, Étude de la micro-explosion de biocarburants émulsionnés sous différents schémas de chauffage radiatifs, congrès Société Française de Thermique (SFT), Valenciennes (France), 31 mai - 3 juin 2022.

[2] O. Moussa, D. Tarlet, P. Massoli, J. Bellettre, Mesure de température de gouttes d'eau dispersées dans l'huile à l'aide de la LIF2C, congrès Société Française de Thermique (SFT), Nantes (France), 3 - 6 juin 2019 (*Poster*).

[3] O. Moussa, D. Tarlet, P. Massoli et J. Bellettre. Étude paramétrique de la microexplosion de gouttes d'émulsion eau/huile, Société Française de thermique, Pau, France, 29-31 Mai 2018.

[4] D. Tarlet, Y. Fan, S. Roux, Lingai Luo, Équipartition de la production d'entropie dans un mini-échangeur, Congrès de la Société Française de Termique (SFT), Lyon, 2014.

[5] M. Hamdi, D. Tarlet, O. Rouaud, M. Havet, Étude comparative de traceurs PIV dans les écoulements électro-hydro-dynamiques (EHD), 15ème Congrès Français de Visualisation et de Traitement d'Images en Mécanique des Fluides (FLUVISU 15), Orléans, 2013.

[6] M. Hamdi, M. Havet, O. Rouaud, D. Tarlet, Choix de traceur optimal pour la mesure PIV dans les écoulements EHD, 14ème Congrès de la Société Française de Génie des Procédés (SFGP), Lyon, 8-10 octobre 2013.

[7] D. Tarlet, A. Dejean, J. Bellettre, C. Allouis, P. Massoli, Distribution de température de gouttes-filles issues de trois micro explosions différentes, Congrès de la Société Française de Termique (SFT), Gerardmer, 2013.

[8] A. Belkadi, D. Tarlet, C. Castelain, J. Bellettre, T. Burgheleea, Mesures in situ de l'écoulement secondaire d'un mélangeur à advection chaotique, 14ème Congrès Français de Visualisation et de Traitement d'Images en Mécanique des Fluides (FLU-VISU), Lille, 21 – 25 novembre 2011.

[9] D. Tarlet, C. Bendicks, R. Bordàs, B. Wunderlich, D. Thévenin, B. Michaelis, Mesures par "Particle Tracking Velocimetry" gazeuse (3-D PTV) avec traceurs multicolores, 13ème Congrès Français de Visualisation et de Traitement d'Images en Mécanique des Fluides (FLUVISU-13), Reims (France), 16-20 Novembre 2009.

[10] D.Tarlet, J. Bellettre, M. Tazerout, C. Rahmouni, Comparaison expérimentale des émissions de particules issues de flammes de fioul lourd pur et en émulsion, congrès Société Française de Thermique (SFT), Toulouse (France), 3-6 Juin 2008.

[11] D. Tarlet, J. Bellettre, M. Tazerout, C. Rahmouni, Simulation numérique comparée de la combustion d'un spray de fioul lourd pur et en émulsion, congrès Société Française de Thermique (SFT), Les Embiez (France), 29 Mai - 1er Juin 2007 (CD-ROM).

[12] D. Tarlet, J. Bellettre, M. Tazerout, C. Rahmouni, Simulation numérique de la combustion d'une gouttelette d'émulsion de l'eau dans l'huile, congrès Société Française de Thermique (SFT), Reims (France) 2005, pp.349-354.

Ouvrages collectifs

[1] D. Tarlet, C. Bendicks, R. Bordas, B. Wunderlich, D. Thévenin, B. Michaelis, "Coloured Tracer Particles Employed for 3-D Particle Tracking Velocimetry (PTV) in Gas Flows" in : Nitsche, W., Dobriloff, C. (eds) Imaging Measurement Methods for Flow Analysis. Notes on Numerical Fluid Mechanics and Multidisciplinary Design, vol 106. Springer, Berlin, Heidelberg, 2009.

[2] A. Belkadi, D. Tarlet, A. Montillet, J. Bellettre, "Emulsification in Mini-Channels for Biodiesel Production", in Kylie M. Tannen, Emulsification : Processes, New Technology and Current Applications, Nova Science Publisher, 2013.

4 Activités d'enseignement

Voici le volume horaire de mon activité d'enseignement à Polytech Nantes, dans ses département "Thermique-Énergétique et Mécanique" (TEM) et "Maîtrise des énergies" (MdE). Les années marquées d'un astérisque (*) sont celles où j'ai exercé la responsabilité d'année des TEM.4; à ce titre nous avons mis en place des enseignements en distanciel en 2020 (et après).

Année universitaire	Total heures éq. TD		
2021 - 2022 (*)	338	2015 - 2016	240
2020 - 2021 (*)	328	2013 - 2014	230
2019 - 2020 (*)	315	2012 - 2013	231
2018 - 2019	289	2011 - 2012	233
2017 - 2018	303	2010 - 2011	248
2016 - 2017	252	2009 - 2010	225

Mon activité d'enseignement concerne jusqu'à présent :

- la combustion,

- les transferts convectifs (mono- et diphasique),
- la simulation CFD,
- l'algorithmique (langage C) et le traitement de données (Python / Matlab),
- les sciences humaines, dont le Développement Durable Responsabilité Sociétale (DDRS),
- les projets transversaux aux différents départements de Polytech Nantes.

Enfin les visites aux stagiaires (TEM) et le suivi d'apprentis (MdE) permettent de recueillir l'attente de leur employeur, et aident à continuellement perfectionner l'adéquation de nos formations au marché de l'emploi. Elles permettent également de mesurer l'épanouissement de nos étudiants une fois en situation professionnelle⁴, et de définir les compétences qui les y préparent le mieux.

Parmi les faits majeurs qui résument ces années :

- --la demande grandissante pour l'apprentissage par projets,
- une numérisation croissante (énoncés, rendus, évaluations)
- la montée en puissance de l'apprentissage (Contrats de professionnalisation, choix d'orientation universitaire)

^{4.} cf. remarque d'une étudiante en stage de fin d'études : "Maintenant, je vois à quoi ça sert !"

5 Curriculum vitæ

Dominique TARLET Nantes Université Laboratoire de Thermique et Energie de Nantes LTeN UMR CNRS 6607 B.P. 50609 - 44306 Nantes cedex 3 Né le : 14 août 1981 à Saumur (49) Nationalité française Permis B

Courriel : dominique.tarlet@univ-nantes.fr

SITUATION ACTUELLE

- Maître de conférences depuis le 01/10/09 au département Thermique-Energétique et Mécanique de Polytech Nantes, composante de Nantes Université.
- Enseignant-chercheur au Laboratoire de Thermique et Energie de Nantes LTeN UMR CNRS 6607

FORMATION

- *1999* : <u>Baccalauréat scientifique</u>, spécialité physique-chimie. *Mention bien*
- 2000 : <u>Classe préparatoire</u> Physique, Technologie et Sciences de l'Ingénieur (PTSI) au lycée la Baronnerie (Angers)
- 2004 : Ingénieur Ecole des Mines de Nantes, Option Génie des Systèmes Energétiques.
- 2004 : <u>DEA</u> "Thermique, Energétique et Genie des Procédés", Polytech'Nantes Université de Nantes.
- 2008 : Obtention du label doctoral « Science et Entreprise » de l'Ecole des Mines de Paris Epreuve orale de clôture intitulée : « *Les nanotechnologies : contexte et applications* »
- 2008 : <u>Thèse</u> Ecole des Mines de Paris ED. 432 « Energétique métiers de l'ingénieur » Intitulée " *Contribution à la combustion des émulsions de l'eau dans le fioul lourd »* Soutenue le 5 mars 2008 à l'Ecole des Mines de Nantes Mention *très honorable avec les félicitations du jury*

Jury constitué de :

- M. André Lallemand, Professeur à l'INSA de Lyon (Rapporteur),
- M. Bernard Baudoin, Professeur à l'Ecole des Mines de Douai (Rapporteur),
- M. Jérôme Bellettre, Professeur à l'Université de Nantes,
- M. Renaud Gicquel, Professeur à l'Ecole des Mines de Paris (Dir. de thèse)
- M. Gérard Gréhan, Directeur de Recherche au CNRS (CORIA UMR 6614),
- M. Gwenaël Guyonvar'ch, docteur, ADEME Angers
- M. Camal Rahmouni, docteur, CreeD R&D Veolia Environnement
- M. Mohand Tazerout, Professeur Ecole des Mines de Nantes (Dir. de thèse)

ACTIVITES DE RECHERCHE

 2005 - 2008 : Thèse de Doctorat Veolia Environnement / Ecole des Mines de Nantes (contrat CIFRE No. 1068-2004)
 " Contribution à la combustion des émulsions de l'eau dans le fioul lourd"

9 communications et 2 publications.

- ✓ Modélisation de la combustion diphasique, avec et sans émulsion.
- ✓ Les tendances obtenues confirment les observations expérimentales : flammes plus courtes, plus intenses sur leur axe avec l'émulsion.
- ✓ Campagne expérimentale au centre R&D de Veolia (3 mois au CreeD, en région parisienne) : mesure d'une baisse de 30 à 35 % des émissions de particules grâce à l'émulsification.

2008 - 2009 : Stage post-doctoral (cf. « Synthèse des travaux de recherche » ci-jointe) à l'Institut de Mécanique des Fluides et de Thermodynamique de l'Université « Otto von Guericke » de Magdeburg (Allemagne).

Impliqué sur 2 projets auprès du Directeur de l'Institut (Prof. Dominique Thévenin) :



Responsable du projet « Imagerie des écoulements gazeux par 3D-PTV (Particle Tracking Velocimetry) au moyen de traceurs multicolores », financé par la DFG (l'équivalent allemand de l'ANR), en collaboration avec un doctorant de l'Institut d'Informatique et Electrotechnique de cette même Université. Projet inclus dans le « framework » fédéral allemand SPP-1147 de recherche sur l'imagerie des écoulements fluides (http://www.spp1147.tu-berlin.de).

Depuis 2009 : Activité de recherche au Laboratoire de Thermique et Energie de Nantes (LTeN UMR CNRS 6607) – cf. rubrique **Encadrement**.



EXPERIENCE PEDAGOGIQUE

<u>A l'Ecole des Mines de Nantes</u>

2006 - 2007 :	Intervenant de Travaux Dirigés (26 h. sur 2 années scolaires)
	« Mécanique des fluides et transfert thermique » (S5 - BAC + 3)

- 2006 : Intervenant en Travaux Pratiques (8 h.) logiciel FLUENT « Simulation numérique des écoulements turbulents » (S7 - BAC + 4)
- 2007 : Cours (4 h.) + Travaux Dirigés (4 h.) « Cycles thermodynamiques industriels »



option : Génie des Systèmes Energétiques (S9 - BAC +5) + Présentation du cahier des charges et réunions de suivi avec les groupes de mini-projet d'évaluation (~4 h.) + Cours sur le « Mécanisme de Développement Propre » (Prot. Kyoto) (1 h.)

2008 : Cours (2 h.) + Travaux Dirigés (4 h.) « *Combustion* » (S7 - BAC + 4) + Cours sur le « Mécanisme de Développement Propre » (Prot. Kyoto) (1 h.)

A l'Université de Magdeburg (Allemagne)

- 2008 : Intervenant en Travaux Dirigés (8 h.) « Mécanique des Fluides Numérique » (équivalent S5 – BAC +3)
- 2009 : Chargé de cours (20 h.) « *Fluid Dynamics* » (en anglais, pour étudiants étrangers S7 – BAC +4)

<u>A Polytech Nantes (composante Nantes Université)</u> Département Thermique-Energétique et Mécanique Département Maîtrise des Energies (alternance) Service transversal « Homme, Entreprise, Société » (HES)

Année universitaire	Total heures équiv. TD		
2021 - 2022 (*)	338	2015-2016	240
2020 - 2021 (*)	328	2013-2014	230
2019 - 2020 (*)	315	2012-2013	231
2018 - 2019	289	2011-2012	233
2017 - 2018	303	2010-2011	248
2016 - 2017	252	2009-2010	225

(*) depuis 2019 : Responsable d'année TEM.4

Mon activité d'enseignement concerne jusqu'à présent :

- la combustion,
- les transferts thermiques convectifs (mono- et diphasique),
- la simulation CFD,
- l'algorithmique (langage C) et le traitement de données (Python / Matlab),
- les sciences humaines, dont le Développement Durable Responsabilité Sociétale (DDRS),
- les projets transversaux et inter-disciplinaires aux différents départements de Polytech Nantes.

CO-ENCADREMENT DE STAGES

- 2005-2006 : Projet de fin d'études (PFE) d'un étudiant de l'Universida Politecnica Madrid (master équivalent BAC +5) : Julian Duran Maestre (co-encadrement durant 6 mois)
- 2008 : Master of Science (6 mois) : R.V. Ayyagari (Université de Magdeburg).
- 2010-2011 : Encadrement d'un Stagiaire EDEDD (Ecole Doctorale Energie et Développement Durable) : Arab Belkadi du 01/09/10 au 01/02/11.
- 2012 : Stage d'Anthony Dejean (École Navale) « Bilan thermique expérimental d'une micro explosion d'eau dans l'huile ».
- 2014: Stage de V. Kailash Master international "Thermique-Énergétique" de Polytech Nantes « *Micro-explosion of water-in-oil emulsified fuel* ».
- **2017 :** Stage de Rocío Montenegro Ramírez Master international "Thermique-Énergétique" de Polytech Nantes « *Conception and optimization of a multi scale gas-liquid contactor* ».

CO-ENCADREMENT DE THESES DE DOCTORAT

Taux d'encadrement [%] - avec les publications liées : RICL, Conférences Internationales (CI), Conférences Nationales (CN), Ouvrages Collectifs (CN)

2011-2015: Thèse de doctorat de M. Arab Belkadi [30%] inititulée « Etude expérimentale du fractionnement liquide-liquide en micro-canaux pour la production en continu de biodiesels émulsionnés » soutenue le 03/03/2015 (financement Région Pays de Loire, Programme d'Études pour la Recherche Ligérienne en Énergie, PERLE 2 de 2011 à 2014) Directeur de thèse : Jérôme Bellettre (LTEN UMR 6607), autre co-encadrant : Agnès Montillet (GEPEA UMR 6144)
RICL : [23, 26, 31] CI : [12, 15] CN : [8] Ouvrage [2]

2011-2014: Thèse de doctorat de M. Merouane Hamdi [30%] intitulée « *Etudes thermiques et dynamique de l'intensification des transferts par vent ionique – Application au procédé de séchage* » soutenue le 09/12/2014 (financement Région Pays de Loire, Programme d'Études pour la Recherche Ligérienne en Énergie, PERLE 2 de 2011 à 2014). Directeur de thèse : Michel Havet (GEPEA UMR 6144), autre co-encadrant : Olivier Rouaud (GEPEA UMR 6144) RICL : [7, 27] CI : [10, 11] CN : [5, 6]

2014-2016: Thèse de doctorat de Mme Peipei Zhou intitulée « Intensification of heat and mass transfer in microchannel two-phase flow in a reactor » soutenue le 02/06/2018 à l'Université de Canton (Chine, South China University of

Technology – doctorat SCUT (Directeur de thèse Xiaofang Hu, SCUT), financement SCUT + convention d'accueil au LTeN du 01/09/2014 au 01/09/2016) RICL : [21, 22]

- 2015-2018: Thèse de doctorat de M. Thomas Guewouo [30%] intitulée « Système intégré et multi-fonctionnel de stockage électrique-thermique avec l'option de trigénération » soutenue le 16/03/2018 à l'Université de Nantes (financement Erasmus Caribou) Direction de thèse : Lingai Luo (LTeN UMR 6607), avec Mohand Tazerout (GEPEA UMR 6144) au départ. RICL : [17]
- 2016-2019: Thèse de doctorat de M. Omar Moussa [50%] intitulée « Etude par diagnostics optiques des conditions menant à la micro explosion d'une goutte d'émulsion eau/huile » soutenue le 12/12/2019 à l'Université de Nantes (financement MESR). Directeurs de thèse : Jérôme Bellettre (LTeN UMR 6607) et Patrizio Massoli (CNR Napoli, Italie). RICL : [5, 6, 8, 11, 13, 15, 20] CI : [3, 4, 5, 6] CN : [2, 3]
- 2020-2023 : Thèse de doctorat de M. Thomas Naudin [50%] intitulée « Etude de l'impact de la micro-gravité sur l'atomisation de gouttes de carburants alternatifs émulsionnés » à l'Université de Nantes et au CNR Napoli, Italie (financement Région Pays de Loire / CNR Napoli, Italie). Direction de thèse : Jérôme Bellettre (LTeN UMR 6607) et Patrizio Massoli (CNR Napoli, Italie). RICL : [2] CI : [0, 1, 2] CN : [1]
- 2020-2023 : Thèse de doctorat de M. Valentin Chataignier [30%] initiulée « Etude des flux thermiques dans un réacteur de pyrolyse continu, vertical et coaxial pour la valorisation de biomasse », partenariat CIFRE Nantes Université / Sol.3D. Direction de thèse : Jérôme Bellettre (LTeN UMR 6607). RICL : [1]
- 2021-2025: Thèse de doctorat de M. Hao Cheng [30%] intitulée « Intensification des procédés d'absorption de CO2 dans les micro-mélangeurs / réacteurs » (financement China Scholarship Council du 01/06/2021 au 31/05/2025). Direction de thèse : Yilin Fan (LTEN UMR 6607), autre co-encadrant : Lingai Luo (LTEN UMR 6607). RICL : [3, 4]

AUTRES COMPETENCES

Langues étrangères :

- Anglais : C1 (7,5 / 9 « Good user » obtenu à l'examen IELTS en 2003)
- Allemand : B1 (6 mois en colocation avec des étudiants allemands)

Projets – demandes de financements [obtenu]

Avec les publications liées : RICL, Conférences Internationales (CI), Conférences Nationales (CN), Ouvrages Collectifs (CN)

- 2023 : [réponse en attente] Membre du projet international Hubert Curien (PHC) du Ministère de l'Europe et des Affaires Etrangères, France / Chine PHC Cai Yuanpei
- 2021-2024 : [obtenu] Contrat CIFRE No. 2020/1170 LTeN / La Florentaise, rôle de coencadrant de la thèse de Valentin Chataigner. RICL : [1]
- 2021 : [obtenu] Projet China Scholarship Council (CSC) bourse de thèse de Cheng Hao sur la période 2021-2025 : rôle de co-encadrant. RICL : [3-4]
- 2019 : [obtenu] Membre du projet international Hubert Curien (PHC) du Ministère de l'Europe et des Affaires Etrangères, France / Chine PHC Xu Guangqi (No. 45614RM, 2020) RICL : [12]
- 2019 : Porteur du projet **Mexifuels** proposé comme Projet international Hubert Curien (PHC) franco-russe avec M. Pavel Strizhak (Université Polytechnique de Tomsk, Russie).
- 2019: Porteur du projet Photobio-Algues proposé en réponse au « Défi Biomimétisme » de la Mission CNRS pour les Initiatives Transverses et Interdisciplinaires (MITTI).
- 2018 : Porteur du projet **Metha-efficiency**, pré-proposition en réponse à l'AAPG ANR 2018, sur la méthanation.
- 2015 : [obtenu] Rôle de co-encadrant de la thèse de Thomas Naudin (2021-2024) chaire Connect Talent de la Région des Pays de la Loire : Optical Diagnostics in Energy (ODE).
 RICL : [2], CI [0,1,2], CN [1]
- 2014-2017 : [obtenu] Rôle de co-encadrant de la thèse de M. Thomas Guewouo, financement CARIBOU : branche internationale d'ERASMUS. RICL : [17]
- 2011-2014: [obtenu] Rôle de co-encadrant des thèses de M. Arab Belkadi et M. Merouane Hamdi, financement PERLE: Programme d'Etudes pour la Recherche Ligérienne en Energie, Région Pays de la Loire.
 RICL [7,23,26,27], CI: [10-12,15], CN [5,6,8]

6 Le mot de la fin

Pascal, "Pensées" No. 77, "Raison des effets" : Les sciences ont deux extrémités qui se touchent. La première est la pure ignorance naturelle où se trouvent tous les hommes en naissant. L'autre extrémité est celle où arrivent les grandes âmes, qui, ayant parcouru tout ce que les hommes peuvent savoir, trouvent qu'ils ne savent rien, et se rencontrent en cette même ignorance d'où ils étaient partis; mais c'est une ignorance savante qui se connaît.

Bibliographie

[Luo, 2015] (2015). Plate heat exchanger. WO2015/193600.

- [Abrahamse et al., 2001] Abrahamse, A. P. J., van der Padt, A., Boom, R., and Heij, W. (2001). Process fundamentals of membrane emulsification : simulation with cfd. Aiche Journal, 47 :1285–1291.
- [Afzal and Kim, 2015] Afzal, A. and Kim, K.-Y. (2015). Convergent divergent micromixer coupled with pulsatile flow. Sensors and Actuators B : Chemical, 211 :198 – 205.
- [Agyeman et al., 2022] Agyeman, E. K. K., Edelin, D., and Lecointe, D. (2022). Experimental study of the effect of a cross airflow on the dynamics and heat transfer performance of impinging circular water jets on a concave surface. *Heat Transfer Engineering*, 43(6) :516–530.
- [Ansari and Kim, 2010] Ansari, M. A. and Kim, K.-Y. (2010). Mixing performance of unbalanced split and recombine micromixers with circular and rhombic subchannels. *Chemical Engineering Journal*, 162(2):760 – 767.
- [Antonov et al., 2020a] Antonov, D., Piskunov, M., Strizhak, P., Tarlet, D., and Bellettre, J. (2020a). Dispersed phase structure and micro-explosion behavior under different schemes of water-fuel droplets heating. *Fuel*, 259 :116241.
- [Antonov et al., 2020b] Antonov, D., Shlegel, N., Strizhak, P., Tarlet, D., and Bellettre, J. (2020b). Energy analysis of secondary droplet atomization schemes. *International Communications in Heat and Mass Transfer*, 117 :104666.
- [at al., 2005] at al., A. K. (2005). Use of animal fats as ci engine fuel by making stable emulsions with water and methanol. *Fuel*, 84 :12–13.
- [Avedisian, 1980] Avedisian, C. (1980). Superheating and boiling of water in hydrocarbons and in hydrocarbon mixtures - phd thesis.
- [Avedisian, 1981] Avedisian, C. (1981). Spontaneous nucleation in droplet combustion. ASME paper No. 81-WA/HT-43.
- [Avedisian and Andres, 1978] Avedisian, C. and Andres, R. (1978). Bubble nucleation in superheated liquid-liquid emulsions. Journal of Colloid and Interface Science, 64(3).
- [Avedisian and Glassman, 1981] Avedisian, C. and Glassman, I. (1981). Superheating and boiling of water in hydrocarbons at high pressures. *International Journal* of Heat and Mass Transfer, 24 :695–706.
- [Ballester et al.,] Ballester, J., Dopazo, C., Vidal, P., and Ojeda, L. Large-scale laboratory experiments on pollutant emissions in heavy oil combustion, combustion, energy and the environment, vol. 2, gordon and breach, 1995.

- [Barber and Emerson, 2008] Barber, R. and Emerson, D. (2008). Optimal design of microfluidic networks using biologically inspired principles. *Microfluidics and Nanofluidics*, 4 :179 – 191.
- [Belkadi et al., 2015] Belkadi, A., Tarlet, D., Montillet, A., Bellettre, J., and Massoli, P. (2015). Water-in-oil emulsification in a microfluidic impinging flow at high capillary numbers. *International Journal of Multiphase Flow*, 72 :11–23.
- [Belkadi et al., 2016] Belkadi, A., Tarlet, D., Montillet, A., Bellettre, J., and Massoli, P. (2016). Study of two impinging flow microsystems arranged in series. application to emulsified biofuel production. *Fuel*, 170 :185–196.
- [Bremond and Bibette, 2012a] Bremond, N. and Bibette, J. (2012a). Exploring emulsion science with microfluidics. *Soft Matter*, 8 :10549.
- [Bremond and Bibette, 2012b] Bremond, N. and Bibette, J. (2012b). Exploring emulsion science with microfluidics. *Soft Matter*, 8(1) :10549–10559.
- [Castanet et al., 2023] Castanet, G., Antonov, D., Zubrilin, I., Strizhak, P., and Sazhin, S. (2023). Effects of water subdroplet location on the start of puffing/microexplosion in composite multi-component fuel/water droplets. *Fuel*, 341 :127609.
- [Cen et al., 2019] Cen, C., Wu, H., fon Lee, C., Fan, L., and Liu, F. (2019). Experimental investigation on the sputtering and micro-explosion of emulsion fuel droplets during impact on a heated surface. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 132 :130–137.
- [Chauveau et al., 2011] Chauveau, C., Birouk, M., and Gokalp, I. (2011). An analysis of the d2-law departure during droplet evaporation in microgravity. *International Journal of Multiphase Flow*, 37(3) :252–259.
- [Chen et al., 2011] Chen, J. J., Chen, C. H., and Shie, S. R. (2011). Optimal designs of staggered dean vortex micromixers. *International Journal of Molecular Sciences*, 12(6) :3500–3524.
- [Chen et al., 2021] Chen, Y., Zhu, C., Fu, T., and Ma, Y. (2021). Mass transfer enhancement of co2 absorption into [bmim][bf4] aqueous solution in microchannels by heart-shaped grooves. *Chemical Engineering and Processing - Process Intensification*, 167 :108536.
- [Cheng et al., 2023a] Cheng, H., Fan, Y., Tarlet, D., Luo, L., and Fan, Z. (2023a). Microfluidic-based chemical absorption technology for co2 capture : Mass transfer dynamics, operating factors and performance intensification. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 181 :113357.
- [Cheng et al., 2023b] Cheng, H., Tarlet, D., Fan, Y., and Luo, L. (2023b). Mass transfer enhancement for co2 chemical absorption in a spiral baffle embedded microchannel. *Chemical Engineering Science*, 280 :118968.
- [Cieslicki and Piechna, 2009] Cieslicki, K. and Piechna, A. (2009). Investigations of mixing process in microfluidic manifold designed according to biomimetic rule. *Lab Chip*, 9 :726–732.
- [Coppola et al., 2023] Coppola, A., Massa, F., Montagnaro, F., and Scala, F. (2023). Analysis of the behaviour of limestone sorbents for sorption-enhanced gasification in dual interconnected fluidised bed reactor. *Fuel*, 340 :127594.
- [de Gennes et al., 2005] de Gennes, P.-G., Brochard-Wyart, F., and Quere, D. (2005). *Gouttes, bulles, perles et ondes.* Belin.

- [De Menech et al., 2008] De Menech, M., Garstecki, P., Jousse, F., and Stone, H. A. (2008). Transition from squeezing to dripping in a microfluidic t-shaped junction. *Journal of Fluid Mechanics*, 595 :141–161.
- [Desjonqueres et al., 2017] Desjonqueres, P., Menard, T., Tarlet, D., and Bellettre, J. (2017). Comparison between numerical and experimental water-in-oil dispersion in a microchannel. *ILASS Conference 2017, Valencia*, 1.
- [Dryer, 1976] Dryer, F. (1976). Water addition to practical combustion systems - concepts and application. In 16th Symposium International on Combustion, Cambridge.
- [Dumouchel et al., 2009] Dumouchel, C., Yongyingsakthavorn, P., and Cousin, J. (2009). Light multiple scattering correction of laser-diffraction spray drop-size distribution measurements. *International Journal of Multiphase Flow*, 35(3):277– 287.
- [Engl et al., 2008] Engl, W., Backov, R., and Panizza, P. (2008). Controlled production of emulsions and particles by milli- and microfluidic techniques. *Current Opinion in Colloid & Interface Science*, 13(13):206 – 216.
- [Erbacher et al., 1999] Erbacher, C., Bessoth, F. G., Busch, M., Verpoorte, E., and Manz, A. (1999). Towards integrated continuous-flow chemical reactors. *Microchimica Acta*, 131(1) :19–24.
- [Gollahalli, 1979] Gollahalli, S. (1979). An experimental study of the combustion of unsupported drops of residual oils and emulsions. *Combustion Science and Technology*, 19:245–250.
- [Gunther et al., 2004] Gunther, A., Khan, S. A., Thalmann, M., Trachsel, F., and Jensen, K. F. (2004). Transport and reaction in microscale segmented gas-liquid flow. *Lab Chip*, 4 :278–286.
- [Guo et al., 2013] Guo, X., Fan, Y., and Luo, L. (2013). Mixing performance assessment of a multi-channel mini heat exchanger reactor with arborescent distributor and collector. *Chemical Engineering Journal*, 227 :116–127. IMRET 12 : Proceedings of the Twelfth International Conference on Microreaction Technology.
- [H. Yamasaki, 1992] H. Yamasaki, M.Tsue, T. (1992). Evaporation and combustion of emulsified fuel (effect of fuel volume and water content on the onset of microexplosion). In *Hnd JSME-KSME Thermal Engineering Conference*, pages 201–206. Proceedings of The Combustion Institute.
- [Halter et al., 2020] Halter, F., Chen, Z., Dayma, G., Bariki, C., Wang, Y., Dagaut, P., and Chauveau, C. (2020). Development of an optically accessible apparatus to characterize the evolution of spherically expanding flames under constant volume conditions. *Combustion and Flame*, 212 :165–176.
- [Hertzog et al., 2006] Hertzog, D., Ivorra, B., Mohammadi, B., Bakajin, O., and Santiago, J. (2006). Optimization of a microfluidic mixer for studying protein folding kinetics. Anal. Chem., 78:4299 – 4306.
- [Huang et al., 2009] Huang, J.-H., Kim, J., Agrawal, N., Sudarsan, A. P., Maxim, J. E., Jayaraman, A., and Ugaz, V. M. (2009). Rapid fabrication of bio-inspired 3d microfluidic vascular networks. *Advanced Materials*, 21(35):3567–3571.

- [Ivanov and Nefedov, 1962] Ivanov, V. and Nefedov, P. (1962). Experimental investigation of the combustion process of natural and emulsified liquid fuels. Trudy Goryachikh Iskopayemykh. Vol. 19, pp. 35-45.
- [Jacques et al.,] Jacques, M., Jordan, J., Williams, A., and Hadley-Coates, L. The combustion of water-in-oil emulsions and the influence of asphaltene content, proceeding of the 16th symposium (int.) on combustion, the combustion institute, 1976.
- [Kadota and Yamasaki, 1982] Kadota, T. and Yamasaki, H. (1982). Recent advances in the combustion of water fuel emulsion. Progress in Energy and Combustion Science, 28.
- [Kashid et al., 2010] Kashid, M., Gupta, A., Renken, A., and Kiwi-Minsker, L. (2010). Numbering-up and mass transfer studies of liquid ?liquid two-phase microstructured reactors. *Chemical Engineering Journal*, 158(2) :233–240.
- [Kobayashi et al., 2007] Kobayashi, I., Uemura, K., and Nakajima, M. (2007). Formulation of monodisperse emulsions using submicron-channel arrays. *Colloids* and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects, 296(1):285–289.
- [Kumar et al., 2006a] Kumar, M. S., Kerihuel, A., Bellettre, J., and Tazerout, M. (2006a). Ethanol animal fat emulsions as a diesel engine fuel - part 1 : Formulations and influential parameters. *Fuel*, 85 :2640–2645.
- [Kumar et al., 2006b] Kumar, M. S., Kerihuel, A., Bellettre, J., and Tazerout, M. (2006b). Ethanol animal fat emulsions as a diesel engine fuel - part 2 : Engine test analysis. *Fuel*, 85(17) :2646–2652.
- [Larachi et al., 1998] Larachi, F., Cassanello, M., and Laurent, A. (1998). Gas ?liquid interfacial mass transfer in trickle-bed reactors at elevated pressures. *Indus*trial & Engineering Chemistry Research, 37(3):718–733.
- [Lasheras et al., 1979] Lasheras, J., Fernandez-Perello, A., and Dryer, F. (1979). Initial observations of the free droplet combustion characteristics of water-in-fuel emulsions. *Combustion Science and Technology*, 21 :1–14.
- [Law, 1977] Law, C. (1977). A model for the combustion of oil/water emulsion droplets. Combustion Science and Technology, 17:29–38.
- [Law et al., 1980] Law, C., Lee, C., and Srinivasan, N. (1980). Combustion characteristics of water-in-oil emulsion droplets. *Combustion and Flame*, 37 :125–143.
- [Li et al., 2019a] Li, G., Pu, X., Shang, M., Zha, L., and Su, Y. (2019a). Intensification of liquid ?liquid two-phase mass transfer in a capillary microreactor system. *AIChE Journal*, 65(1):334–346.
- [Li et al., 2019b] Li, J., Jia, L., Chen, Y., Li, L., Mo, S., Wang, J., and Wang, C. (2019b). Microfluidic fabrication and thermal properties of microencapsulated nheptadecane with hexanediol diacrylate shell for thermal energy storage. *Applied Thermal Engineering*, 162 :114278.
- [Limare et al., 2023] Limare, A., Popinet, S., Josserand, C., Xue, Z., and Ghigo, A. (2023). A hybrid level-set / embedded boundary method applied to solidificationmelt problems. *Journal of Computational Physics*, 474 :111829.
- [Luo, 2013] Luo, L. (2013). Heat and mass transfer intensi cation and shape optimization : A Multi-scale Approach. Springer.

- [Lv et al., 2015] Lv, B., Guo, B., Zhou, Z., and Jing, G. (2015). Mechanisms of co2 capture into monoethanolamine solution with different co2 loading during the absorption/desorption processes. *Environmental Science & Technology*, 49(17):10728–10735. PMID : 26236921.
- [Madejski et al., 2022] Madejski, P., Chmiel, K., Subramanian, N., and Kus, T. (2022). Methods and techniques for co2 capture : Review of potential solutions and applications in modern energy technologies. *Energies*, 15(3).
- [Marrone et al., 1984] Marrone, N. J., Kennedy, I., and Dryer, F. (1984). Coke formation in the combustion of isolated heavy oil droplets. *Combustion Science* and *Technology*, 36 :149–170.
- [Marx et al., 2023] Marx, F., Dieringer, P., Strohle, J., and Epple, B. (2023). Solid flux measurement in dual fluidized bed processes based on solid samples. *Fuel*, 341 :127589.
- [Mattiello et al., 1992] Mattiello, M., Cosmai, L., and Pistone, L. (1992). Experimental evidence for microexplosions in water/fuel oil emulsion flames inferred by laser light scattering. In *Twenty-fourth Symposium (International) on Combus*tion, pages 1573–1578. The combustion institute.
- [Melo-Espinosa et al., 2018] Melo-Espinosa, E. A., Bellettre, J., Tarlet, D., Montillet, A., Piloto-Rodriguez, R., and Verhelst, S. (2018). Experimental investigation of emulsified fuels produced with a micro-channel emulsifier : Puffing and micro-explosion analyses. *Fuel*, 219 :320–330.
- [Melo-Espinosa et al., 2015] Melo-Espinosa, E. A., Piloto-Rodriguez, R., Goyos-Perez, L., Sierens, R., and Verhelst, S. (2015). Emulsification of animal fats and vegetable oils for their use as a diesel engine fuel : An overview. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 47 :623–633.
- [Moussa et al., 2018] Moussa, O., Tarlet, D., Massoli, P., and Bellettre, J. (2018). Parametric study of the micro-explosion occurrence of w/o emulsions. *Interna*tional Journal of Thermal Sciences, 133 :90–97.
- [Moussa et al., 2020] Moussa, O., Tarlet, D., Massoli, P., and Bellettre, J. (2020). Investigation on the conditions leading to the micro-explosion of emulsified fuel droplet using two colors lif method. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 116 :110106.
- [Mura et al., 2014] Mura, E., Calabria, R., Califano, V., Massoli, P., and Bellettre, J. (2014). Emulsion droplet micro-explosion : Analysis of two experimental approaches. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 56 :69–74. Eighth Mediterranean Combustion Symposium.
- [Mura et al., 2012a] Mura, E., Josset, C., Loubar, K., Bellettre, J., and Massoli, P. (2012a). Experimental study of the water in oil emulsions features by differential scanning calorimetry analysis. *Applied Energy*, 97 :834–840. Energy Solutions for a Sustainable World - Proceedings of the Third International Conference on Applied Energy, May 16-18, 2011 - Perugia, Italy.
- [Mura et al., 2010] Mura, E., Josset, C., Loubar, K., Huchet, G., and Bellettre, J. (2010). Effect of dispersed water droplets in micro-explosion phenomenon for water in oil emulsion. *Atomization and Sprays*, 20-9 :791–799.

- [Mura et al., 2012b] Mura, E., Massoli, P., Josset, C., Loubar, K., and Bellettre, J. (2012b). Study of the micro-explosion temperature of water in oil emulsion droplets during the leidenfrost effect. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 43:63–70. Seventh Mediterranean Combustion Symposium.
- [Murai and Fujioka, 2008] Murai, S. and Fujioka, Y. (2008). Challenges to the carbon dioxide capture and storage (ccs) technology. *IEEJ Transactions on Electrical* and Electronic Engineering, 3(1):37–42.
- [Naudin et al., 2022] Naudin, T., Tarlet, D., Calabria, R., Massoli, P., and Bellettre, J. (2022). Experimental study of water-in-oil droplet micro-explosion using lif measurements : effect of radiative heating configuration. In *ILASS Americas 32nd Annual Conference on Liquid Atomization and Spray Systems*. ILASS Americas.
- [Ocampo-Barrera et al., 2001] Ocampo-Barrera, R., Villasenor, R., and Diego-Marin, A. (2001). An experimental study of the effect of water content on combustion of heavy fuel oil/water emulsion droplets. *Combustion and Flame*, 126 :1845–1855.
- [Pan et al., 2014] Pan, M.-Y., Qian, Z., Shao, L., Arowo, M., Chen, J.-F., and Wang, J.-X. (2014). Absorption of carbon dioxide into n-methyldiethanolamine in a high-throughput microchannel reactor. *Separation and Purification Technology*, 125 :52–58.
- [Plouffe et al., 2016] Plouffe, P., Bittel, M., Sieber, J., Roberge, D. M., and Macchi, A. (2016). On the scale-up of micro-reactors for liquid ?liquid reactions. *Chemical Engineering Science*, 143 :216–225.
- [Sazhin, 2017] Sazhin, S. S. (2017). Modelling of fuel droplet heating and evaporation : Recent results and unsolved problems. *Fuel*, 196 :69–101.
- [Schreyer et al., 2020] Schreyer, F., Luderer, G., Rodrigues, R., Pietzcker, R. C., Baumstark, L., Sugiyama, M., Brecha, R. J., and Ueckerdt, F. (2020). Common but differentiated leadership : strategies and challenges for carbon neutrality by 2050 across industrialized economies. *Environmental Research Letters*, 15(11) :114016.
- [Segawa et al., 2000] Segawa, D., Yamasaki, H., Kadota, T., Tanaka, H., Enomoto, H., and Tsue, M. (2000). Water-coalescence in an oil-in-water emulsion droplet burning under microgravity. *Proceedings of the Combustion Institute*, 28(1):985– 990.
- [Shinjo et al., 2014] Shinjo, J., Xia, J., Ganippa, L. C., and Megaritis, A. (2014). Physics of puffing and microexplosion of emulsion fuel droplets. *Physics of Fluids*, 26(10) :103302.
- [Shlegel et al., 2019] Shlegel, N., Strizhak, P., Tarlet, D., and Bellettre, J. (2019). Comparing the integral characteristics of secondary droplet atomization under different situations. *International Communications in Heat and Mass Transfer*, 108 :104329.
- [Sirignano, 1983] Sirignano, W. A. (1983). Fuel droplet vaporization and spray combustion theory. Progress in Energy and Combustion Science, 9 :291–322.
- [Sjogren, 1977] Sjogren, A. (1977). Burning of water-in-oil emulsions. In 16th International Symposium on Combustion, pages 297–305.

- [Stewart and Hessami, 2005] Stewart, C. and Hessami, M.-A. (2005). A study of methods of carbon dioxide capture and sequestration? ?the sustainability of a photosynthetic bioreactor approach. *Energy Conversion and Management*, 46(3):403– 420.
- [Strizhak et al., 2020] Strizhak, P., Volkov, R., Moussa, O., Tarlet, D., and Bellettre, J. (2020). Measuring temperature of emulsion and immiscible two-component drops until micro-explosion using two-color lif. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 163 :120505.
- [Strizhak et al., 2017] Strizhak, P. A., Piskunov, M. V., Volkov, R. S., and Legros, J. C. (2017). Evaporation, boiling and explosive breakup of oil?water emulsion drops under intense radiant heating. *Chemical Engineering Research and Design*, 127:72–80.
- [Subrenat et al., 2003] Subrenat, A., Bellettre, J., and Le Cloirec, P. (2003). 3-d numerical simulations of flows in a cylindrical pleated filter packed with activated carbon cloth. *Chemical Engineering Science*, 58(22) :4965–4973.
- [Sugiura et al., 2002] Sugiura, S., Nakajima, M., and Seki, M. (2002). Effect of channel structure on microchannel emulsification. *Langmuir*, 18(15):5708–5712.
- [Suh and Kang, 2010] Suh, Y. and Kang, S. (2010). A review on mixing in microfluidics. *Micromachines*, pages 82–111.
- [Suzuki et al., 2011] Suzuki, Y., Harada, T., Watanabe, H., Shoji, M., Matsushita, Y., Aoki, H., and Miura, T. (2011). Visualization of aggregation process of dispersed water droplets and the effect of aggregation on secondary atomization of emulsified fuel droplets. *Proceedings of the Combustion Institute*, 33(2) :2063– 2070.
- [S.Vellaiyan and K.S.Amirthagadeswaran, 2016] S.Vellaiyan and K.S.Amirthagadeswaran (2016). The role of water-in-diesel emulsion and its additives on diesel engine performance and emission levels : A retrospective review. Alexandria Engineering Journal, 55 :2463–2472.
- [Syed Masharuddin et al., 2022] Syed Masharuddin, S. M., Abdul Karim, Z. A., Meor Said, M. A., Amran, N. H., and Ismael, M. A. (2022). The evolution of a single droplet water-in-palm oil derived biodiesel emulsion leading to microexplosion. *Alexandria Engineering Journal*, 61(1):541–547.
- [Tan et al., 2012] Tan, J., Lu, Y., Xu, J., and Luo, G. (2012). Mass transfer performance of gas ?liquid segmented flow in microchannels. *Chemical Engineering Journal*, 181-182 :229–235.
- [Tarlet et al., 2016a] Tarlet, D., Allouis, C., and Bellettre, J. (2016a). The balance between surface and kinetic energies within an optimal micro-explosion. *Interna*tional Journal of Thermal Sciences, 107 :179–183.
- [Tarlet et al., 2012] Tarlet, D., Bendicks, C., Roloff, C., Bordas, R., Wunderlich, B., Michaelis, B., and Thevenin, D. (2012). Gas flow measurements by 3d particle tracking velocimetry using coloured tracer particles. *Flow Turbulence and Combustion*, 88 :343–365.
- [Tarlet et al., 2020] Tarlet, D., Fan, Y., and Luo, L. (2020). Design and mixing performance characterization of a mini-channel mixer with nature-inspired geometries. *Chemical Engineering Research and Design*, 164 :230–239.

- [Tarlet et al., 2014a] Tarlet, D., Fan, Y., Roux, S., and Luo, L. (2014a). Entropy generation analysis of a mini heat exchanger for heat transfer intensification. *Experimental Thermal and Fluid Science*, 53 :119–126.
- [Tarlet et al., 2016b] Tarlet, D., Josset, C., and Bellettre, J. (2016b). Comparison between unique and coalesced water drops in micro-explosions scanned by differential calorimetry. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 95:689–692.
- [Tarlet et al., 2014b] Tarlet, D., Mura, E., Josset, C., Bellettre, J., Allouis, C., and Massoli, P. (2014b). Distribution of thermal energy of child-droplets issued from an optimal micro-explosion. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 77:1043–1054.
- [Thevenin and Janiga, 2008] Thevenin, D. and Janiga, G. (2008). *Optimization and Computational Fluid Dynamics*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg.
- [Thomas Naudin, 2023] Thomas Naudin, Dominique Tarlet, R. C. P. M. J. B. (2023). Does internal convection promote micro-explosion of w/o emulsion droplets? Atomization and Sprays, XX :XX.
- [Tice et al., 2004] Tice, J. D., Lyon, A. D., and Ismagilov, R. F. (2004). Effects of viscosity on droplet formation and mixing in microfluidic channels. *Analytica Chimica Acta*, 507(1):73–77. Microfluidics and Lab On a Chip.
- [Tondeur et al., 2011a] Tondeur, D., Fan, Y., Commenge, J., and Luo, L. (2011a). Flow and pressure distribution in linear discrete ladder-type fluidic circuits : An analytical approach. *Chemical Engineering Science*, 66(12) :2658 – 2586.
- [Tondeur et al., 2011b] Tondeur, D., Fan, Y., Commenge, J., and Luo, L. (2011b). Uniform flows in rectangular lattice networks. 66 :5301 – 5312.
- [Tondeur and Luo, 2004] Tondeur, D. and Luo, L. (2004). Design and scaling laws of ramified fluid distributors by the constructal approach. *Chemical Engineering Science*, 59(8) :1799–1813. Complex Systems and Multi-scale Methodology.
- [Volkov and Strizhak, 2018] Volkov, R. and Strizhak, P. (2018). Using planar laser induced fluorescence to explore the mechanism of the explosive disintegration of water emulsion droplets exposed to intense heating. *International Journal of Thermal Sciences*, 127 :126–141.
- [Volkov and Strizhak, 2017] Volkov, R. S. and Strizhak, P. A. (2017). Planar laserinduced fluorescence diagnostics of water droplets heating and evaporation at high-temperature. Applied Thermal Engineering, 127:141–156.
- [Wang et al., 2021] Wang, J., Li, H., Li, X., Cong, H., and Gao, X. (2021). An intensification of mass transfer process for gas-liquid counter-current flow in a novel microchannel with limited path for co2 capture. *Process Safety and Environmental Protection*, 149 :905–914.
- [Wang et al., 2010] Wang, L., Fan, Y., and Luo, L. (2010). Heuristic optimality criterion algorithm for shape design of fluid flow. *Journal of Computational Physics*, 20:8031–8044.
- [Wang et al., 2019] Wang, L., Wang, J., Qiao, X., Ju, D., and Lin, Z. (2019). Effect of ambient temperature on the micro-explosion characteristics of soybean oil droplet : The phenomenon of evaporation induced vapor cloud. *International Journal* of Heat and Mass Transfer, 139:736–746.

- [Wang and Wang, 2007] Wang, S. and Wang, S. (2007). Distribution optimization for plate-fin catalytic combustion heat exchanger. *Chemical Engineering Journal*, 131(1):171–179.
- [Watanabe et al., 2010] Watanabe, H., Suzuki, Y., Harada, T., Matsushita, Y., Aoki, H., and Miura, T. (2010). An experimental investigation of the breakup characteristics of secondary atomization of emulsified fuel droplet. *Energy*, 35(2):806–813. ECOS 2008.
- [Williams, 1973] Williams, A. (1973). Combustion of droplets of liquid fuels : A review. *Combustion and Flame*, 21 :1–31.
- [Woldemariam et al., 2016] Woldemariam, M., Filimonov, R., Purtonen, T., Sorvari, J., Koiranen, T., and Eskelinen, H. (2016). Mixing performance evaluation of additive manufactured milli-scale reactors. *Chemical Engineering Science*, 152:26 – 34.
- [Xu et al., 2006] Xu, J., Li, S., Tan, J., Wang, Y., and Luo, G. (2006). Preparation of highly monodisperse droplet in a t-junction microfluidic device. *AIChE Journal*, 52(9) :3005–3010.
- [Yanase et al., 2017] Yanase, I., Someya, K., and Kobayashi, H. (2017). Co2 absorption and desorption property of porous sio2 with co-mea complex. *Journal of CO2 Utilization*, 21 :139–144.
- [Yao et al., 2021] Yao, C., Zhao, Y., Ma, H., Liu, Y., Zhao, Q., and Chen, G. (2021). Two-phase flow and mass transfer in microchannels : A review from local mechanism to global models. *Chemical Engineering Science*, 229 :116017.
- [Yin et al., 2022] Yin, Y., Chen, W., Wu, C., Zhang, X., Fu, T., Zhu, C., and Ma, Y. (2022). Bubble dynamics and mass transfer enhancement in split ?and ?recombine (sar) microreactor with rapid chemical reaction. *Separation and Purification Technology*, 287 :120573.
- [Yin et al., 2019] Yin, Y., Zhu, C., Fu, T., Ma, Y., Wang, K., and Luo, G. (2019). Enhancement effect and mechanism of gas-liquid mass transfer by baffles embedded in the microchannel. *Chemical Engineering Science*, 201 :264–273.
- [Yue et al., 2010] Yue, J., Boichot, R., Luo, L., Gonthier, Y., Chen, G., and Yuan, Q. (2010). Flow distribution and mass transfer in a parallel microchannel contactor integrated with constructal distributors. *AIChE Journal*, 56(2) :298–317.
- [Zaloha et al., 2012] Zaloha, P., Kristal, J., Jiricny, V., Volkel, N., Xuereb, C., and Aubin, J. (2012). Characteristics of liquid slugs in gas-liquid taylor flow in microchannels. *Chemical Engineering Science*, 68(1):640–649.
- [Zeng et al., 2011] Zeng, Q., Guo, Y., Niu, Z., and Lin, W. (2011). Mass transfer coefficients for co2 absorption into aqueous ammonia solution using a packed column. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 50 :10168–10175.
- [Zhang et al., 2021] Zhang, S., Zhu, C., Feng, H., Fu, T., and Ma, Y. (2021). Intensification of gas-liquid two-phase flow and mass transfer in microchannels by sudden expansions. *Chemical Engineering Science*, 229 :116040.
- [Zhao and Middelberg, 2011] Zhao, C.-X. and Middelberg, A. P. J. (2011). Twophase microfluidic flows. *Chemical Engineering Science*, 66:1394–1411.

- [Zhou et al., 2018] Zhou, P., Tarlet, D., Fan, Y., Hu, X., and Luo, L. (2018). Waterin-oil emulsification in a bifurcated tree-like network : Flow distribution properties and their impact on the emulsion polydispersity. *Chemical Engineering Research* and Design, 134 :420–433.
- [Zhou et al., 2017] Zhou, P., Tarlet, D., Wei, M., Fan, Y., and Luo, L. (2017). Novel multi-scale parallel mini-channel contactor for monodisperse water-in-oil emulsification. *Chemical Engineering Research and Design*, 121:233–244.

NantesUniversité

Titre : Intensification des transferts de chaleur et de masse pour la micro explosion optimale et les procédés en mini-canaux

Mots clés : Micro explosion, micro-fluidique, mini-canaux, émulsion, captage de CO₂, écoulement multi-échelles.

Résumé : Ce mémoire de HDR présente nos travaux depuis 2009 portant sur l'intensification des transferts de chaleur et de masse aux interfaces liquide-liquide et gaz-liquide. Ce type d'intensification est nécessaire à la combustion en spray des combustibles liquides en émulsion, elle favorise le phénomène de micro-explosion qui la rend moins polluante. C'est pourquoi la généalogie causes thermiques des et mécaniques de la micro-explosion optimale en est le premier verrou scientifique, traité dans une première partie. Mais cette intensification améliore également l'émulsification préliminaire du combustible, à travers des micro-écoulements aux larges surfaces spécifiques; pour une variété d'autres applications la technologie multiéchelles y permet une émulsification plus orientée vers l'homogénéité.

Enfin l'absorption chimique gaz-liquide dans les mini-canaux ouvre cette intensification à des applications de dépollution de plus en plus prisées, notamment d'absorption du CO₂. Ce deuxième verrou scientifique est donc traité dans la seconde partie, relative aux microécoulements liquide-liquide (procédés d'émulsification et de mélange) et gaz-liquide. L'ensemble de ces travaux fut à dominante expérimentale. Cependant nous avons parfois fait appel à la simulation numérique, à de simples bilans d'énergie ou à des corrélations appropriées pour confronter la réalité mesurée aux explications offertes par le calcul théorique. Les perspectives futures de ces travaux sont également formulées, pour chacun de ces deux verrous scientifiques; ceci afin de progresser dans la compréhension et la maîtrise de ces transferts aux interfaces, s'appliquant à des procédés sûrs et performants au service du développement durable.

Title : Intensification of heat and mass transfer applied to optimal micro-explosion and to minichannel embedded processes.

Keywords : Micro-explosion, microfluidics, mini-channel, emulsion, carbon capture, multi-scale.

Abstract : This Habilitation thesis sums up our campaign since scientific 2009 about intensification of heat and mass transfer at liquidliquid (emulsions, mixing processes) and gasliquid interfaces. This kind of intensification is necessary to spray combustion of emulsified liquid fuels, because it favors the micro-explosion phenomenon that makes it less polluting. That is why determination of the root thermal and mechanical causes of the optimal microexplosion is the first main issue of the present thesis. Secondly, intensification of mass transfer is carried out in the emulsifying mini-channel feeding the liquid fuel, which offers a large specific surface; for a variety of other applications technology multi-scale enables а more homogeneous-oriented emulsification.

Gas-liquid absorption in mini-channels also applies intensification of mass transfer to environment-friendly applications, such as absorption of CO₂. This second main issue is treated in the second part, dealing with liquidliquid (emulsification process) and gas-liquid flows. All the work done is predominantly experimental. Nevertheless, we sometimes used numerical simulations, straightforward energy balances or appropriate correlations to confront real-world measurements to the explanations offered by theoretical results. Perspectives of these works are also detailed for each of these main issues in order to move ahead a better understanding and control of these transfers at fluid interfaces, applied to reliable and efficient processes in the service of sustainable development