

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Institut National Polytechnique de Toulouse (Toulouse INP)

Discipline ou spécialité :

Génie des Procédés et de l'Environnement

Présentée et soutenue par :

M. MOHAMAD AL SAYEGH

le jeudi 1 décembre 2022

Titre :

Impact des propriétés physico-chimiques sur l'hydrodynamique et le transfert de matière des films ruisselants sur des surfaces corruguées.

Ecole doctorale :

Mécanique, Energétique, Génie civil, Procédés (MEGeP)

Unité de recherche :

Laboratoire de Génie Chimique (LGC)

Directeur(s) de Thèse :

M. MICHEL MEYER

Rapporteurs :

M. HERVE DUVAL, SUPELEC

M. OLIVIER POTIER, UNIVERSITE LORRAINE

Membre(s) du jury :

MME KARINE LOUBIÈRE, TOULOUSE INP, Président

M. EMMANUEL CID, TOULOUSE INP, Invité(e)

MME CHRISTINE DALMAZZONE, IFPEN, Membre

MME DOMINIQUE TOYE, UNIVERSITE DE LIEGE, Membre

M. MICHEL MEYER, TOULOUSE INP, Membre

M. PASCAL ALIX, IFPEN, Invité(e)

Table des matières

Remerciements.....vii

Résumé.....ix

Abstract.....xi

Liste des figures.....xii

Liste des tableaux.....xvii

Nomenclature.....xviii

INTRODUCTION GENERALE.....1

Chapitre I: Garnissages et écoulements en film mince.....3

I.1 Informations générales sur les colonnes à garnissage.....3

I.1.1 Garnissage vrac.....4

I.1.2 Garnissage structuré.....5

I.2 Caractéristiques des écoulements en film mince.....7

I.3 Positionnement et apports de l'étude.....12

Chapitre II: Etat de l'art des techniques de mesure.....18

II.1 Epaisseur du film liquide.....18

II.1.1 Méthode électrique.....18

II.1.2 Méthodes acoustiques.....19

II.1.3 Méthodes optiques.....20

II.1.4 Méthodes nucléoniques.....26

II.1.5 Discussion.....26

II.2 Mesure de la vitesse à l'interface du film liquide.....29

II.2.1 Vélocimétrie laser.....29

II.2.2 Vélocimétrie par images de particules (PIV).....30

II.2.3 Vélocimétrie par suivi de particules (PTV).....32

II.2.4 Méthode de flot optique.....34

II.2.5 Discussion.....36

II.3 Transfert de matière gaz-liquide.....37

II.3.1 Techniques basées sur la fluorescence.....37

II.3.2 Colorimétrie.....39

II.3.3 Discussion.....41

II.4 Conclusion.....41

Chapitre III: Dispositif expérimental et application des techniques de mesure.....44

III.1 Mise en œuvre de l'écoulement en film mince 44
III.1.1 Conception du pilote 44
III.1.2 Plaques d'étude 46
III.1.3 Systèmes d'injection liquide 49
III.2 Propriétés physico-chimiques des fluides d'étude 50
III.3 Conditions expérimentales 51
III.4 Mise en œuvre des techniques de mesure de l'épaisseur et de la vitesse 53
III.4.1 Principe de la fluorescence 53
III.4.2 Application aux mesures 54
III.4.3 Source lumineuse 55
III.4.4 Caméras 55
III.4.5 Traitement du signal de fluorescence 56
III.4.6 Calibration pour la mesure de la vitesse à l'interface gaz-liquide 61
III.5 Mise en œuvre de la méthode de mesure du transfert de matière 63
III.5.1 Mesure par fluorescence 2-D dans le film liquide 63
III.5.2 Mesure par sonde à oxygène 64
III.6 Traitement des données et mise en forme 66
III.6.1 Lignes d'étude 66
III.6.2 Evolution de l'épaisseur moyenne, maximale et minimale 68
III.6.3 Fréquence des ondulations 69
III.6.4 Vitesse à l'interface liquide 70
III.6.5 $\boldsymbol{kLa}$ par mesure locale du transfert 71
III.6.6 $\boldsymbol{KLa}$ par mesure globale du transfert 72
Chapitre IV: Etude expérimentale de l'instabilité de l'écoulement en film mince sur la plaque plane et la plaque corruguée transversale 74
IV.1 Epaisseur du film 74
IV.1.1 Topologie et profils d'onde 74
IV.1.2 Distribution axiale de l'épaisseur du film liquide 79
IV.1.3 Variation temporelle de l'épaisseur du film sur la plaque corruguée transversale : creux, crête et après la crête 83
IV.1.4 Evolution axiale de l'épaisseur maximale, minimale et moyenne sur la plaque plane 87
IV.1.5 Fréquence des ondes liquides sur la plaque plane 89
IV.2 Vitesse Interfaciale 90
IV.2.1 Impact de la tension de surface 90
IV.2.2 Impact de la viscosité 95
IV.3 Impact du contre-courant gaz 98

IV.3.1 Forme des profils d'ondes 98
IV.3.2 Vitesse interfaciale des ondulations cisaillées par le gaz 100
IV.3.3 Fréquence des ondulations liquides.....100
IV.4 Impact du débit liquide et de l'inclinaison. 102
IV.5 Discussion et conclusions 107
Chapitre V: Plaque similaire au Mellapak^{TM} 250Y.....111
V.1 Impact du système d'injection.....112
V.1.1 Profil d'écoulement liquide et étude de mouillabilité 112
V.2 Impact des paramètres physico-chimiques et de la topologie de la plaque 114
V.2.1 Effet de la tension de surface 114
V.2.2 Effet de la viscosité.....115
V.2.3 Distribution de l'épaisseur dans différentes zones 116
V.3 Vitesse interfaciale.....120
V.3.1 Influence de la tension de surface 120
V.3.2 Influence de la viscosité.....120
V.4 Impact du débit liquide 123
V.5 Coefficient de transfert côté liquide 125
V.5.1 Transfert de matière local 125
V.5.2 Transfert de matière global 129
V.6 Discussion et conclusion.....132
CONCLUSION GENERALE.....133
Références Bibliographiques.....139

Remerciements

Les travaux de recherche présentés dans ce document ont été effectués au Laboratoire de Génie Chimique de Toulouse (LGC) et financés par l'IFP Energies Nouvelles. Je tiens tout d'abord à remercier l'ensemble des personnes de ces deux organismes qui ont contribuées à la réalisation de ce travail.

Je tiens à remercier les membres du jury d'avoir accepté d'évaluer mes travaux de recherche et pour tous leurs commentaires et leurs remarques pertinentes. Je souhaite adresser mes plus sincères remerciements à Olivier POTIER et Hervé DUVAL pour avoir rapporté sur ce travail ainsi qu'à Dominique TOYE et Karine LOUBIERE pour avoir accepté de participer au jury. Merci pour le temps que vous avez consacré à la lecture de ce document et pour la discussion scientifique très riche que nous avons eue après la présentation de mes travaux.

J'adresse mes sincères remerciements à mon directeur de thèse, Michel MEYER pour sa contribution à la réussite de cette thèse et son aide pendant ces trois années. Je te remercie infiniment pour ton encadrement, tes conseilles et pour la motivation que tu m'as donnée pendant la période la plus difficile de cette thèse lors du confinement lié à la pandémie Covid-19. Je tiens à remercier David ROUZINEAU pour son encadrement et le temps qu'il a consacré pour ce travail. Il a toujours trouvé du temps pour répondre aux besoins de cette thèse.

Je remercie tout particulièrement Emmanuel CID pour son encadrement et son aide sur la partie optique. C'est grâce à lui que j'ai résolu toutes les difficultés liées aux techniques de mesure utilisées au cours de ces trois années.

Je remercie chaleureusement mes encadrants à l'IFP Energies Nouvelles, Pascal ALIX, Christine DALMAZZONE et John ROESLER. C'était un véritable honneur de travailler avec vous. J'ai apprécié toutes les réunions et les discussions qu'on a eues et qui ont aidé à faire avancer me recherches et améliorer mes capacités d'analyse.

J'exprime mes remerciements à tous les professeurs, chercheurs, techniciens et spécialistes du LGC pour leur aide et leur compétence. Je remercie spécialement Béatrice KAWAS, Benoit MIZZI et Maiko RIODEL. Je tiens à remercier mes collègues et mes amis du LGC : Ali HAMIEH, Bilal MOKDAD et Abdullahi ADAMU avec qui j'ai partagé des moments agréables. Merci à mes collègues de bureau, Youssef et Usman, j'étais chanceux de partager avec vous ce bureau où on a passé ces trois années inoubliables.

Je remercie également mes amis en France et au Liban pour leur aide et leur motivation. Je remercie infiniment mes chers parents, Ghazi et Nahla et mes sœurs Fida, Maya, Farah et Nawal pour leur soutien moral et de m'avoir aidé pour arriver jusqu'à là.

Enfin, j'adresse ma profonde reconnaissance à ma conjointe Alaa pour son soutien inconditionnel, sa motivation et sa patiente pendant ces trois années. Sans toi, cette période aurait dû être très difficile, merci et je t'aime.

Résumé

Ces travaux de thèse s'inscrivent dans le cadre des recherches qui visent à étudier les variations locales de l'hydrodynamique et du transfert de matière des écoulements en film mince, sur des surfaces complexes proches de celles des colonnes à garnissage structuré utilisées pour le captage du CO_2. Dans ces colonnes, le gaz à traiter qui s'écoule à contre-courant est mis en contact avec un solvant liquide. Ce dernier ruisselle sur les plaques de garnissage dont la géométrie a pour but de maximiser les taux de transfert de matière et de chaleur et l'aire de contact. Le taux de transfert est relié à l'hydrodynamique de l'écoulement au sein de ces garnissages.

Plusieurs paramètres jouent un rôle important sur les régimes d'écoulement dans ces garnissages parmi lesquels : la physico-chimie du solvant, le débit liquide, le débit gaz, la géométrie, l'état de surface des plaques et leurs inclinaisons. L'objectif de cette thèse est de caractériser expérimentalement l'écoulement en film mince ruisselant afin d'améliorer la compréhension et par suite le développement des modèles des écoulements diphasiques. Dans cette étude, les impacts des paramètres précités ont été étudiés en mesurant l'épaisseur du film liquide, la vitesse interfaciale et le transfert de matière côté liquide en utilisant des méthodes optiques non intrusive. Un dispositif expérimental a été conçu. Trois plaques (plane, corruguée transversale et une géométrie similaire au Mellapak^{TM} 250Y) ont été fabriquées pour caractériser le rôle de la géométrie sur la structure de l'écoulement. Deux fluides caractérisés par une faible tension de surface (σ = 35 et 50 mN/m) et trois fluides caractérisés par une viscosité élevée (μ = 5, 10 et 15 mPa.s) ont été utilisés. L'épaisseur du film liquide et la vitesse interfaciale ont été mesurées sur les trois plaques en appliquant une technique basée sur l'intensité de fluorescence. Le couplage des mesures d'épaisseur du film et de la vitesse interfaciale a permis de mieux cerner l'influence des paramètres étudiés sur les phénomènes d'instabilités observés.

Les taux de transfert de matière ont été estimés uniquement sur la plaque proche de celles composant un élément de garnissage Mellapak^{TM} 250Y. La méthode de temps de vie de fluorescence a été mise en œuvre pour des mesures à l'échelle locale. Cependant, les mesures de transfert de matière locales n'ont pas pu aboutir car la méthode s'est avérée inadaptée aux écoulements instables. Des pistes d'améliorations ont été identifiées, mais elles n'ont pas pu être mises en œuvre dans le cadre de cette thèse. L'absorption physique d'oxygène dans la phase liquide a été retenue à l'échelle globale de la plaque (prélèvements en entrée et en sortie du dispositif). Les mesures de transfert de matière globales ont permis d'estimer une dépendance du coefficient de transfert côté liquide par rapport aux débits gaz, liquide et en fonction de la physico-chimie des fluides. Ces résultats expérimentaux supporteront le développement des modèles d'écoulement diphasiques sur des géométries représentatives d'une plaque de garnissage, et notamment pour les calculs CFD.

Mots clés : Film mince liquide, propriétés physico-chimiques, Capture du CO_2, Transfert de matière Garnissage structuré.

Abstract

This thesis aims to study the local variations of hydrodynamics and mass transfers of thin-film flows on complex surfaces similar to those of structured packings in columns used for CO_2 capture. In these columns, the gas to be treated flows counter-currently with the liquid solvent trickling down over the packing plates. The geometry of the plates is designed to maximize the mass and heat transfer rates and the contact area. The transfer rate is related to the hydrodynamics of the flow within the packing. Several parameters play an important role on the flow regimes in these packings that can be summarized as follows: the physico-chemical properties of the solvent, the liquid flow rate, the gas flow rate, the geometry, the surface condition of the plates and their inclination. The objective of this thesis is to experimentally characterize the thin-film flow in order to better understand and subsequently develop models of these two-phase flows. In this investigation, the impact of the above-mentioned parameters has been studied by measuring the liquid film thickness, interfacial velocity, and liquid side mass transfer using non-intrusive optical methods. For this purpose, an experimental device was designed. Three plates with three different geometries (flat, transverse corrugated, and a sheet very similar in structure to the Mellapak™ 250Y) were manufactured to study the impact of the geometry on the flow structure. Two fluids characterized by a low surface tension (σ = 35 and 50 mN/m) and three fluids characterized by a high viscosity (μ = 5, 10 and 15 mPa.s) were used. The liquid film thickness and interfacial velocity were measured on the three plates by applying fluorescence techniques. Coupling film thickness and interfacial velocity measurements led to a deeper understanding of the influence of the studied parameters on the observed liquid instability phenomena.

Mass transfer rates were estimated only for the plate whose geometry is similar to a Mellapak™ 250Y sheet. The fluorescence lifetime method was implemented for local scale measurements; however, these were unsuccessful due to limitations of the detection system. A physical absorption method was used for measurements at the global scale of the plate with liquid samples taken at the inlet and outlet. The local mass transfer measurements were not successful because the method is not adapted to unstable flows. Possible improvements have been identified, but they could not be implemented in this thesis. The global mass transfer measurements allowed to estimate the impact of the gas flow rate, the liquid flow rate, and the physico-chemical properties of the fluids on the liquid side mass transfer coefficient. These experimental results will support the development of two-phase flow models on a representative geometry of structured packing, and in particular for CFD calculations.

Keywords: thin liquid film, physico-chemical properties, CO_2 capture, mass transfer, structured packing.

Liste des figures

Figure I.1. Les différentes échelles des colonnes à garnissage structuré. 4
Figure I.2. Images de différents types de garnissage en vrac (Copigneaux, 2016). 5
Figure I.3. Différents types et géométries de garnissage structuré (Mackowiak, 2010)**.**....6
Figure I.4. Différents types de surface de plaque de garnissage....6
Figure I.5. Image d'ondulation d'eau ruisselant sur une plaque plane verticale (Park & Nosoko, 2003). 7
Figure I.6. Effet des différents angles de corrugation sur trois différentes géométries de plaque sur la structure de l'écoulement (Liao et al., 2022). 8
Figure I.7. Evolution temporelle d'une goutte liquide en utilisant l'eau comme fluide d'étude (Singh et al., 2017).....9
Figure I.8. *(a) Résultat expérimental illustrant les recirculations au niveau du film liquide dues à la présence des microstructures sur la surface de la plaque (Gerke & Repke, 2019).(b) Résultat numérique illustrant la structure pleinement développée du film liquide ruisselant sur plaque plane verticale avec présence de larges recirculations au niveau de la crête de l'ondulation principale (Miyara, 1999).* 10
Figure I.9. Schéma d'un écoulement en film mince uniforme sur plaque plane inclinée. 12
Figure I.10. Aires de contact calculées en fonction du taux d'arrosage. Corrélations de (Billet & Schultes, 1999), (Rocha et al., 1996) et (C. Wang, 2015) pour le Mellapak^{TM} 250Y. Lignes pointillées = cas maquette ; lignes continues = absorbeur industriel. 14
Figure I.11. Influence de la viscosité du fluide sur la distribution liquide dans une colonne à garnissage structuré (a) 1 mPa.s (b) 10 mPa.s (c) 20 mPa.s ; en blanc l'air, en gris le garnissage et en bleu le liquide (Janzen et al., 2013b). 15
Figure II.1. Schéma du principe des méthodes électriques (Fukano, 1998). 20
Figure II.2. Schéma du principe des méthodes acoustiques (Wang et al., 2019). 21
Figure II.3. Schéma du principe de la méthode de réflexion interne (Shedd & Newell, 1998).....22
Figure II.4. Schéma du principe de la méthode de réflexion externe (Åkesjö et al., 2018).....22
Figure II.5. Schéma du principe de la méthode d'absorption de la lumière (Mendez et al., 2016).....23
Figure II.6. Schéma du principe de la méthode d'ombroscopie (Qiu et al., 2005).....24
Figure II.7. Schéma du principe de la méthode de déplacement laser (Takamasa & Hazuku, 2000). ..25
Figure II.8. Schéma du principe de la mesure d'épaisseur d'un film mince par interférométrie (Han et al., 2011).....26
Figure II.9. Schéma de principe de la méthode vélocimétrie laser (Doran, 2013).....30
Figure II.10. Schéma expérimental de la méthode PIV 2C-2D dans une soufflerie (Markus Raffel el al., 2007). 32
Figure II.11. Les deux modes d'imagerie de particule : (a) faible densité, (b) densité élevée (Markus Raffel et al., 2007).....33
Figure II.12. Séquence d'images consécutives. 35
Figure II.13. Courbe d'excitation Courbe d'émission....40
Figure II.14. Réduction de la résazurine en résorufine par le glucose et l'hydroxyde de sodium (étape 1) ; Réduction de la résorufine en dihydrorésorufine en présence de glucose (étape 2) ; Réoxydation de la dihydrorésorufine en résorufine en présence d'oxygène (étape3) (Xu et al., 2019). 41
Figure III.1. (a) : Schéma du dispositif expérimental (b) : Images réelles du dispositif. 46
Figure III.2. Géométrie de le plaque corruguée transversale. 48
Figure III.3. Géométrie de la plaque corruguée type Mellapak^{TM} 250Y. 49

Figure III.4. Vue détaillée de profil de l'arrivée liquide et gaz ; 1 : arrivée du liquide ; 2 : réservoir contenant la mousse structurée ; 3 : fente réglable ; 4 : plaque support liquide ; 5 : plaque de verre ; 6 : sortie du gaz (Vitry, 2011). 50
Figure III.5. Système d'injection par tube sur la plaque Mellapak^{TM} 250Y. 51
Figure III.6. Principe d'excitation et de désexcitation de la fluorescéine. 54
Figure III.7. Différentes étapes de correction numérique. 58
Figure III.8. (a) : Image brute en niveau de gris montrant la non-uniformité de l'éclairage sur une épaisseur constante. (b) : Image Bspline après ajustement. 59
Figure III.9. Image corrigée de l'écoulement à épaisseur constante en appliquant la fonction Bspline. 60
Figure III.10. (a) : Image brute d'une plaque de 10 creusets. (b) : Courbe de calibration avec les 30 creusets. 62
Figure III.11. Image de mire en damier sur (a) plaque plane (b) : plaque ondulée transversale. 63
Figure III.12. Position du point de mesure de $Cout$ à la sortie et la nouvelle ligne d'injection de l'air. 66
Figure III.13. Schéma du dispositif expérimental modifié pour les mesures de transfert de matière. .67
Figure III.14. (a) : Lignes d'intérêt dans la fenêtre de mesure sur la plaque plane et la plaque corruguée transversale (b) : Position des différents points choisies pour les distributions temporelles sur la plaque corruguée transversale. 68
Figure III.15. Lignes d'intérêt dans la fenêtre de mesure sur la plaque Mellapak^{TM} 250Y pour (a) : W-E1 et W-E2 (b) : W-G1, W-G2 et W-G3 69
Figure III.16. (a) : Position de la zone centrale et des différents points de mesure et (b) : Variation axiale de l'épaisseur maximale δmax, minimale δmin et moyenne δmoy pour W-G1, W-G2 et W-G3 sur plaque plane. 70
Figure III.17. Densité spectrale de puissance pour différentes valeurs de fréquence pour W-E1 et W-E2. 71
Figure III.18. (a) : Epaisseur du film δ et (b) : vitesse interfaciale UL pour W-G3 sur la plaque plane. 72
Figure III.19. Distribution axiale de l'épaisseur du film liquide et de la vitesse interfaciale pour W-G3. 72
Figure IV.1. Influence de la tension de surface sur la topologie de l'écoulement film liquide pour (a) : W-E1 (b) : W-E2. Variation des profils d'onde dans le temps pour (c) : W-E1 (d) : W-E2. 76
Figure IV.2. Influence de la viscosité sur la topologie de l'écoulement du film liquide pour (a) : W-G1 (b) : W-G2 (c) : W-G3. Variation des profils d'onde dans le temps pour (d) : W-G1 (e) : W-G2 et (f) : W-G3. 77
Figure IV.3. Influence de la tension de surface et de la géométrie de la plaque d'étude sur la topologie de l'écoulement du film liquide pour (a) : W-E1 et (b) : W-E2. 79
Figure IV.4. Influence de la viscosité et de la géométrie de la plaque d'étude sur la topologie de l'écoulement film liquide pour 80
Figure IV.5. Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film pour (a) : W-E1 et (b) : W-E2. 81
Figure IV.6. Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film pour (a) : W-G1, (b) : W-G2 et (c) : W-G3. 82
Figure IV.7. Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film pour (a) : W-E1 et (b) : W-E2. 83
Figure IV.8. Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film pour (a) : W-G2 et (b) : W-G3. 84
Figure IV.9. Variation des profils d'onde dans le temps pour le fluide W-E1 au niveau du (a) : creux (b) : crête et (f) : après-crête. 85
Figure IV.10. Variation des profils d'onde dans le temps pour le fluide W-E2 au niveau du (a) : creux (b) : crête et (c) : après-crête. 86

Figure IV.11. Variation des profils d'onde dans le temps pour le fluide W-G2 au niveau du (a) : creux (b) : crête et (f) : après-crête. 87
Figure IV.12. Variation des profils d'onde dans le temps pour le fluide W-G3 au niveau du (a) : creux (b) : crête et (f) : après-crête. 88
Figure IV.13. Variation axiale de l'épaisseur maximale δmax, minimale δmin et moyenne δmoy pour (a) : W-E1 et W-E2 (b) : W-G1, W-G2 et W-G3. 89
Figure IV.14. Densité spectrale de puissance (PSD) de la fluctuation de l'épaisseur du film pour (a) : W-E1 et W-E2 (b) : W-G1 et W-G3. 90
Figure IV.15. Vitesse interfaciale instantanée pour (a) : W-E1 et (b) : W-E2. 92
Figure IV.16. Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film δ et la vitesse interfaciale UL pour (a) : W-E1 et (b) : W-E2. 92
Figure IV.17. (a) : Epaisseur du film δ et (b) : vitesse interfaciale UL pour W-E1. 93
Figure IV.18. Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film δ et de la vitesse interfaciale UL pour W-E1 à θ = 60° et QL = 180 L/h. 94
Figure IV.19. (a) : Epaisseur du film δ et (b) : vitesse interfaciale UL pour W-E2. 95
Figure IV.20. Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film δ et de la vitesse interfaciale UL pour W-E2. 95
Figure IV.21. (a) : Epaisseur du film δ et (b) : vitesse interfaciale UL pour W-G3. 96
Figure IV.22. Distribution axiale de l'épaisseur du film δ et de la vitesse interfaciale UL pour (a) : W-G1 et (b) : W-G3. 97
Figure IV.23. (a) : Epaisseur du film δ et (b) : vitesse interfaciale UL pour W-G2. 98
Figure IV.24. (a) : Epaisseur du film δ et (b) : vitesse interfaciale UL pour W-G3. 98
Figure IV.25. Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film δ et de la vitesse interfaciale UL pour (a) : W-G2 et (b) : W-G3. 99
Figure IV.26. Images de l'épaisseur du film illustrant l'influence du contre-courant gaz pour W-E2 (σ = 50 mN/m) à Θ = 10° et Q_L = 80 L/h. 100
Figure IV.27. Images de l'épaisseur du film illustrant l'influence du contre-courant gaz pour W-G2 (μ = 10 mPa.s) à Θ = 10° et Q_L = 80 L/h. 101
Figure IV.28. Variation de l'épaisseur maximale δ_{max} et de la vitesse interfaciale correspondante U_L vs. La vitesse du contre-courant gaz U_G pour W-E2(σ = 50 mN/m) à Θ = 10° et Q_L = 80L/h. 101
Figure IV.29. Densité spectrale de puissance (PSD) de la fluctuation de l'épaisseur du film pour W-G2. 102
Figure IV.30. Variation de l'épaisseur maximale δ_{max} (h_{max}) et de la vitesse des vagues c vs. La vitesse du contre-courant gaz U_G pour l'eau (Nicolas Kofman, 2014). 103
Figure IV.31. Variation de l'épaisseur moyenne du film δmoy et de la vitesse interfaciale UL en fonction du débit liquide QL pour (a) : W-E1 et W-E2 (b) : W-G1, W-G2 et W-G3. 104
Figure IV.32. Influence de l'inclinaison de la plaque d'étude sur la topologie de l'écoulement film liquide pour (a) : W-G1 à θ = 10° et (b) : W-G1 à θ = 20°. 105
Figure IV.33. Evolution de l'épaisseur adimensionnelle h pour (a) : W-E1 et W-E2 (b) : W-G1, W-G2 et W-G3 vs. Re à θ = 10°. 106
Figure IV.34. Influence du débit liquide sur la topologie de l'écoulement du film liquide pour (a) : W-E1 et (b) : W-E2. 107
Figure IV.35. Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film δ et de la vitesse interfaciale UL pour (a) : W-E1 et (b) : W-E2. 107
Figure IV.36. Influence de la viscosité sur la topologie de l'écoulement de film liquide pour (a): W-G2 (b) : W-G3. Evolution de l'épaisseur du film pour (c) : W-G2 et (d) : W-G3. 108
Figure V.1. Influence de la géométrie de la plaque d'étude sur la topologie de l'écoulement de film liquide pour (a) : W-E1 (b) : W-E2 (c) : W-G1 (d) : W-G2 et (e) : W-G3. 116

Figure V.2. Mesure de l'angle de contact statique pour (a) : W-E1 et (b) : W-E2. 117
Figure V.3. Lignes d'intérêt dans la fenêtre de mesure sur la plaque Mellapak^{TM} 250Y pour (a) : W-E1 et W-E2 (b) : W-G1, W-G2 et W-G3. 118
Figure V.4. Distribution instantanée de l'épaisseur du film pour (a) : W-E1 et (b) : W-E2. 119
Figure V.5. Zone $I\ et\ II$ de la fenêtre de mesure du (a) : fluide W-E1 (b) : fluide W-E2. 120
Figure V.6. Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film pour (a) : W-G1, (b) : W-G2 et (c) : W-G3. 121
Figure V.7. Distribution axiale instantanée de la vitesse interfaciale pour (a) : W-G1, (b) : W-G2 et (c) : W-G3. 124
Figure V.8. Vitesse interfaciale instantanée pour (a) : W-G1, (b) : W-G2 et (c) : W-G3. 125
Figure V.9. Influence de la diminution du débit liquide sur la topologie de l'écoulement du film liquide pour (a) : W-E1 (b) : W-E2 (c) : W-G1 (d) : W-G3. 126
Figure V.10. Distribution du temps de vie de fluorescence dans la fenêtre de mesure (100×100 mm) en utilisant l'eau comme fluide. 129
Figure V.11. Distribution du (a) : niveau de gris moyen et (b) : le temps de vie de fluorescence en utilisant l'eau comme fluide. 130
Figure V.12. Distribution du niveau de gris moyen avec présence de bulle d'air. 130
Figure V.13. Variation de kLa en fonction de la vitesse du contre-courant gaz. 132
Figure V.14. Variation de kLa en fonction de la vitesse interfaciale moyenne. 133

Liste des tableaux

Tableau II-1. Résumé de l'ensemble des méthodes avec leurs avantages et inconvénients. 29
Tableau II-2. Résumé des différentes méthodes de flot optique avec les avantages et les inconvénients. 37
Tableau III-1 : Propriétés physico-chimiques des mélanges utilisés mesurées à T = 21°C et pression atmosphérique P = 1 atm. 52
Tableau III-2 : Conditions opératoires sur chaque plaque d'étude. 54
Tableau V-1 : Vitesse interfaciale moyenne des fluides W-E1 et W-E2 à Q_L = 200L/h – ligne 5. 122
Tableau V-2 : Vitesse interfaciale moyenne des fluides W-G1, W-G2 et W-G3. 125
Tableau V-3 : Valeur du signal en mV mesuré à la sortie de chaque tube d'alimentation liquide et la mesure dans le réservoir. 131
Tableau V-4 : Comparaison des résultats expérimentales avec l'hypothèse de dépendance de Song et al. (2018). 134

Nomenclature

Lettres romaines

a_e	Surface effective (m^2/m^3)
b	Largeur de la plaque (m)
b_c	Base de la corrugation solide (m)
c	Concentration molaire de la solution (mol/L)
C	Concentration de l'oxygène (mg/L)
C_{in}	Concentration de l'oxygène à l'entrée (mg/L)
C_{out}	Concentration de l'oxygène à la sortie (mg/L)
C^*	Concentration de l'oxygène à la saturation (mg/L)
D_{E-G}	Coefficient de diffusivité de l'oxygène dans un mélange eau-glycérol (m^2/s)
d_x et d_y	Déplacements de la luminosité dans le plan de l'image
E	Énergie du photon incident
E'	Énergie du photon émis après excitation
$E_{données}(u, v)$	Terme d'attache aux données
$\lambda E_{régularisation}(u, v)$	Terme de régularisation
f	Fréquence des ondulations (Hz)
f_{mod}	Fréquence de modulation de la lampe (Hz)
h_c	Hauteur de la corrugation solide (m)
I_r	Intensité de référence de la lumière en absence de liquide
I_e	Intensité de la source lumineuse utilisée pour l'excitation
I_f	Intensité de fluorescence émise après excitation
I_t	Intensité de lumière transmise par le liquide

I_x et I_y	Dérivées partielles de la luminosité de l'image en un point
$I_{Brute}\ (x, y)$	Niveau de gris brute au pixel (x,y)
$I_{corrigée}\ (x, y)$	Niveau de gris corrigée au pixel (x,y)
$I_{Bspline}(x, y)$	Niveau de gris de l'image Bspline au pixel (x,y)
$I_{Bspline,Max}$	Niveau de gris maximal de l'image Bspline
$I_{noire}(x, y)$	Niveau de gris du noir de référence au pixel (x,y)
I	Intensité de fluorescence mesurée en présence de l'oxygène
I_0	Intensités de fluorescence mesurée en absence de l'oxygène
g	Force de gravité (m/s^2)
K	Constante de Stern-Volmer (L/mg)
K_L	Coefficient de transfert globale côté liquide (m/s)
K_G	Coefficient de transfert globale côté gaz (m/s)
k_L	Coefficient de transfert locale côté liquide (m/s)
l	Distance parcourue par le faisceau lumineux à travers le verre (m)
Q_L	Débit liquide (L/h)
Q_G	Débit gaz (m^3/h)
U_L	Vitesse interfaciale du film liquide (m/s)
U_m	Vitesse moyenne du film liquide (m/s)
U_G	Vitesse du gaz (m/s)
$S_0, S_1,\ S_2, S_n$	Différents niveaux d'énergie
S_{in}	Signal mesuré à l'entrée (mV)
S_{out}	Signal mesuré à la sortie (mV)

S^*	Signal mesuré à saturation (mV)
x et y	Coordonnées d'un point dans le plan cartésien de l'image
X	Distance longitudinale de la plaque (mm)
Y	Distance transversale de la plaque (mm)
z_r	Distance entre la source laser et le support (m) (méthodes de détection de l'interface)
z_f	Distance entre la source laser et l'interface gaz-liquide (m) (méthodes de détection de l'interface)
Δt	Intervalle de temps entre deux images (s)
ΔP	Perte de charge (Pa)

Lettres grecques

α	Coefficient de transmission
α_c	Angle de la corrugation avec l'horizontale (rad)
τ	Temps de vie de fluorescence (ns)
τ_0	Temps de vie de fluorescence en absence d'oxygène (ns)
$\emptyset$	Rendement quantique du fluorophore utilisé
ν	Viscosité cinématique du film liquide (m^2/s)
μ	Viscosité dynamique du film liquide (Pa/s)
σ	Tension de surface du film liquide (N/m)
ρ	masse volumique du film liquide (kg/m^3)
δ_{max}	Epaisseur du film maximale (µm)
δ_{min}	Epaisseur du film minimale (µm)
δ_{mean}	Epaisseur du film moyenne (µm)
δ	Epaisseur du film (µm)
δ_N	Epaisseur Nusselt (µm)
θ	Angle d'inclinaison de la plaque d'étude (°)
β	Angle de corrugation (°)
γ	Coefficient d'absorption (m^{-1})

λ_e	Longueur d'onde de la source lumineuse (nm)
φ	Déphasage entre les ondes d'émission et d'éxcitation
$\in$	Absorptivité du fluide qui correspond à sa capacité à absorber la lumière
κ	Constante liée à la géométrie de la plaque Mellapak^{TM} 250Y utilisée dans le calcul du nombre de Reynolds

Nombres adimensionnels

A	Absorbance
$\bar{h}$	Epaisseur adimensionnelle du film
Ka	Nombre de Kapitza ($Ka = \frac{\sigma}{\rho_L (g \sin\theta)^{\frac{1}{3}} \nu^{\frac{4}{3}}}$)
PSD	Densité spectrale de puissance
Re	Nombre de Reynolds ($Re = \frac{4Q_L}{b\nu_L}$)

Abréviations

HEPT	Hauteur équivalente à un plateau théorique (m)
LDV	Vélocimétrie laser Doppler
PSD	Power Spectral Density
PIV	Vélocimétrie par image de particule
PTV	Vélocimétrie par suivi de particule
W-E1	Mélange eau-éthanol 1 (σ = 35 mN/m)
W-E2	Mélange eau-éthanol 2 (σ = 50 mN/m)
W-G1	Mélange eau-glycérol 1 (μ = 5 mPa.s)
W-G2	Mélange eau-glycérol 2 (μ = 10 mPa.s)
W-G3	Mélange eau-glycérol 3 (μ = 15 mPa.s)

INTRODUCTION GENERALE

Les émissions de gaz à effet de serre et en particulier les émissions de CO_2 (33 Gt en 2021) impactent l'évolution du climat au niveau mondial (IAE, 2021). Cet impact sur le climat provoque une augmentation de la température et par suite un réchauffement de la planète. Sans les gaz à effet de serre la température moyenne de la terre serait de l'ordre de -18°C alors qu'actuellement elle est d'environ +15°C (Raynal & Tebianian, 2020). Selon le Programme des Nations Unies pour l'Environnement (PNUE), le monde est sur la voie d'une augmentation de 2,7 °C d'ici la fin du siècle. Ce chiffre qui est bien supérieur aux objectifs de l'Accord de Paris sur le climat entraînerait des changements climatiques catastrophiques. Afin de réduire cette augmentation à 1,5°C au cours de ce siècle, qui est l'objectif de l'accord de Paris, le monde doit réduire de moitié les émissions de ces gaz au cours des huit prochaines années. Dans ce contexte, plusieurs procédés de captage de CO_2 ont été développés et les travaux de recherches se sont intensifiées. Les procédés de captage de CO_2 (post-combustion, oxy-combustion et précombustion) ont fait l'objet de tests depuis de nombreuses années dans l'industrie. Un des plus matures est le lavage avec un solvant chimique, très répandu pour le traitement du gaz naturel. Dans le cas d'un lavage, le gaz contenant les impuretés, ou l'espèce à séparer, est envoyé dans une colonne où il est mis en contact avec un solvant liquide. Le CO_2 gazeux est transféré vers le solvant aqueux par absorption réactive. Les colonnes à garnissages sont souvent évoquées pour capter le CO_2 car elles sont des contacteurs gaz-liquides à haute efficacité, avec une porosité élevée (supérieure à 90%) et donc une faible perte de charge. Les garnissages structurés offrent un compromis efficacité/perte de charge légèrement supérieur aux garnissages en vrac. Le liquide s'écoule sous différentes formes (films minces, filets d'eau et gouttelettes) le long des parois du garnissage (structuré ou vrac). Pour les garnissages structurés, l'essentiel du liquide se trouve sous la forme de films minces. Chaque régime d'écoulement entraine des surfaces de contact gaz/liquide et un degré de turbulence différents, ce qui aura un impact sur les performances des colonnes. Si les performances globales des colonnes garnies ont été étudiées, le lien avec les structures d'écoulement présentes est loin d'être maîtrisé. En particulier les paramètres géométriques ou physico-chimiques influençant la structure de ces écoulements sont mal connus. Ces paramètres peuvent modifier la structure des ondulations liquides, l'épaisseur du film et sa vitesse et par conséquent les mouvements de recirculation au sein du film ce qui se traduit par une augmentation ou une diminution des performances de transfert.

L'objectif de cette étude est de mieux caractériser l'écoulement en film mince ruisselant dans les garnissages structurés à l'échelle locale (échelle de la plaque de garnissage). Cette compréhension permettra d'alimenter les modèles multi-échelles et notamment les modèles de mouillage. Cette caractérisation de l'hydrodynamique est effectuée en étudiant l'influence de la morphologie du

support solide sur lequel le solvant aqueux ruissèle, son inclinaison, les paramètres physico-chimiques du solvant, le cisaillement d'un contre-courant gaz et le débit de ce dernier sur la structure des écoulements en film mince.

Dans le premier chapitre de ce manuscrit, des informations générales sur les colonnes à garnissage sont présentées ainsi que les diverses familles de contacteurs gaz-liquide. Ce chapitre est poursuivi par une revue bibliographique sur les écoulements en film mince en lien avec l'intérêt de l'étude.

Le deuxième chapitre présente l'état de l'art des techniques de mesure qui peuvent être appliquées afin d'étudier l'hydrodynamique des écoulements en film mince et le transfert de matière. Dans ce chapitre, les avantages et les inconvénients de chaque méthode sont détaillés, puis le choix des méthodes qui sont appliquées dans l'étude est explicité.

Un troisième chapitre présente le dispositif expérimental, la méthodologie et la mise en œuvre des techniques de mesure permettant l'étude de l'hydrodynamique et du transfert de matière.

Dans un quatrième et un cinquième chapitre, les résultats expérimentaux montrant l'impact des paramètres physico-chimiques et le contre-courant gaz sur l'hydrodynamique sont présentés et discutés. Le chapitre quatre correspond à l'étude sur plaque plane et corruguée transversale et le cinquième chapitre correspond à la géométrie la plus proche du garnissage industriel. Le transfert de matière sera traité dans le cas de la topologie la plus proche d'un garnissage structuré industriel.

Ce mémoire finira sur une conclusion générale et une mise en perspectives de ces travaux.

Chapitre I: Garnissages et écoulements en film mince

Dans ce chapitre, les différentes familles de garnissage, leurs géométries, leurs avantages et inconvénients sont explicités. Les différents régimes d'écoulements en film mince qui s'établissent sur ces garnissages et leurs caractéristiques sont présentés ainsi que les paramètres influençant l'hydrodynamique et le transfert de matière. Cette section sera poursuivie par une explication de l'intérêt de l'étude de l'hydrodynamique et du transfert de matière à l'échelle locale et le lien entre cette étude et l'objectif final d'appréhender les performances de transfert dans les garnissages structurés. Ce chapitre finira par une explication détaillée de l'avantage de cette étude par rapport aux études antérieures qui visent à caractériser les écoulements dans les colonnes à garnissage structuré.

I.1 Informations générales sur les colonnes à garnissage

Dans les procédés industriels, les colonnes à garnissage sont utilisées pour le transfert de matière et de chaleur dans la rectification, l'absorption et l'extraction, ainsi que pour le refroidissement des gaz et des liquides et le traitement des eaux usées. Elles sont principalement utilisées pour des écoulements gaz-liquides à contre-courant. Le gaz est envoyé du bas vers le haut contre un flux descendant du liquide. La phase liquide qui est sous forme d'un film mince et de filets d'eau ruisselant entre en contact avec la phase gazeuse à travers des contacteurs.

Ces contacteurs peuvent être classés en deux grandes familles : garnissages en vrac (comme les anneaux Raschig, anneaux Pall, selles de Berl) et les garnissages structurés (comme les séries Mellapak de Sulzer, Flexipac de Koch-Glitsch et les séries Montz-pak B1 de Montz). Ces différents types de contacteurs gaz-liquide présentent des avantages et des inconvénients relatifs à l'efficacité du transfert de matière, à la perte de charge, au taux d'arrosage et aux conditions d'encrassement. D'autres caractéristiques des contacteurs liquide-vapeur sont d'être chimiquement inertes aux fluides utilisés, résistants à la corrosion, mécaniquement résistants sans avoir un poids excessif ou une mauvaise usinabilité, optimisés en ce qui concerne le volume de vide (avec des passages adéquats pour la vapeur et le liquide sans rétention ou perte de pression excessive). Ils présentent également une surface de contact élevée pour assurer un bon contact entre la phase liquide et la phase vapeur ainsi qu'une résistance à l'encrassement (le matériau de garnissage ne doit pas retenir les particules solides qui sont en suspension dans le liquide). Les performances de ces colonnes sont étudiées à différentes

échelles allant de la colonne dans sa globalité jusqu'à l'échelle de l'élément de garnissage (échelle de la structure géométrique d'une tôle de garnissage). La **Figure I.1** montre les différentes échelles d'une colonne à garnissage structuré. Ces contacteurs gaz-liquide sont souvent évoqués pour capter le CO_2 par absorption réactive.

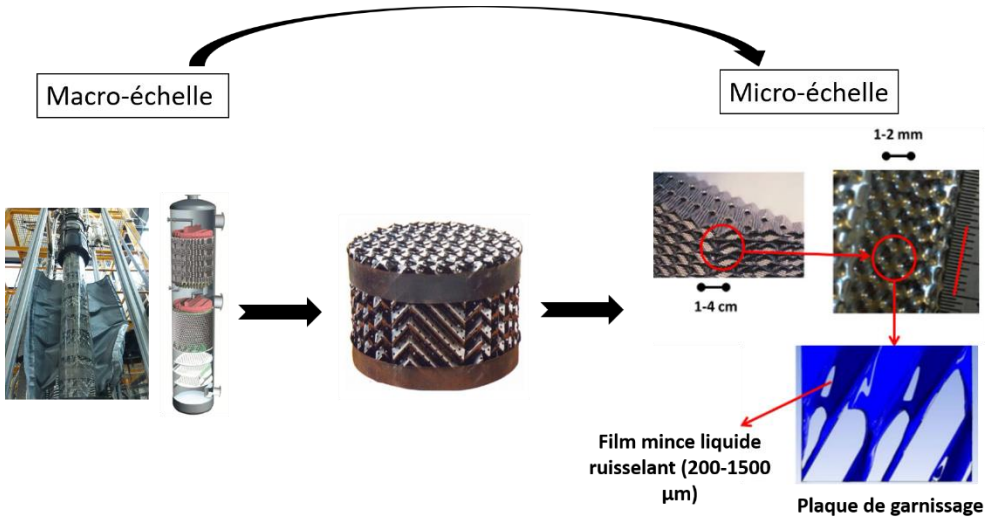


Figure I.1. *Les différentes échelles des colonnes à garnissage structuré.*

I.1.1 Garnissage vrac

Les garnissages en vrac sont des éléments ayant une géométrie définie pour augmenter la surface de contact entre un liquide et un gaz et favoriser ainsi le transfert entre les deux phases tout en respectant un taux de vide élevé. Ces éléments sont disposés de manière aléatoire, en vrac, dans les colonnes. La **Figure I.2** donne un aperçu des garnissages en vrac les plus utilisées. Dès les années 1930, Les Etats-Unis et l'Allemagne ont commencé à collecter des données de conception géométrique pour les garnissages en vrac, initialement pour des sphères en céramique et les anneaux cylindriques de Raschig (**Figure I.2**).

Jusqu'aux années 1960, l'utilisation des colonnes à garnissage était limitée à des installations relativement petites, avec des diamètres de colonne inférieurs à 1 m. Cela était dû aux propriétés des anneaux de Raschig qui devenaient moins efficaces avec l'augmentation du diamètre de la colonne. L'introduction des anneaux Pall ayant une géométrie cylindrique mais perforée (**Figure I.2**) par BASF a été la première solution contre ces limitations. Les études de conception de ce type de garnissage ont continué afin de réduire plus encore les limitations observées et d'améliorer les performances. Le nombre de géométries de garnissage inventées ces cinquante dernières années est impressionnant. Ils sont fabriqués en métal, céramique ou même en plastique. Le choix du matériau utilisé doit

respecter certains critères parmi lesquels : assurer une résistance contre la corrosion, ne pas être couteux, assurer une bonne mouillabilité et un taux de vide élevé, une faible perte de charge et des vitesses de transfert de masse et de chaleur élevées.

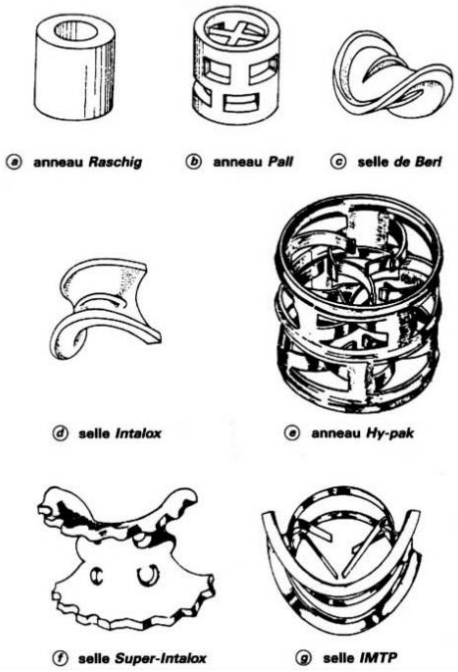


Figure I.2. *Images de différents types de garnissage en vrac (Copigneaux, 2016).*

I.1.2 Garnissage structuré

Dans les années 1960, Sulzer a été la première société à mettre en place les garnissages structurés avec le Sulzer BX suivi par le Mellapak^{TM} 250Y. Ces garnissages structurés sont fabriqués à base de plaques corruguées. Aujourd'hui, il existe sur le marché des dizaines de géométries de garnissage (**Figure I.3**) et leurs évolutions se poursuivent surtout avec l'arrivée de la technique de l'impression 3D qui a accéléré la diversification de ces géométries (Kawas et al., 2021).

Les garnissages structurés les plus connus sont composés d'un assemblage de fines (≈ 0.1 mm) feuilles métalliques ondulées avec ou sans perforations. Les ondulations sont inclinées d'un certain angle β (en général, cet angle est de 45° ou de 60°) par rapport à l'axe horizontal. Les ondulations de deux tôles adjacentes sont orientées dans des directions opposées avec un angle β pour l'une et 180°- β pour l'autre. Les tôles sont assemblées parallèlement en blocs ou galettes. Les galettes sont superposées dans une colonne avec une rotation de 90° entre chaque niveau afin d'améliorer la distribution des liquides. Ces tôles ondulées peuvent être fabriquées à partir de plaques lisses ou gaufrées avec des microstructures de forme tétraédrique ou pyramidale imprimées sur la surface. Plusieurs types de surface de plaque existent sur le marché (**Figure I.4**). Des études ont montré que la

présence de ces microstructures induit une meilleure mouillabilité et favorise la recirculation du liquide au sein du film ce qui intensifie les flux de transfert (Gerke & Repke, 2019).

L'assemblage des plaques est réalisé de sorte à constituer des galettes ou des éléments de galettes dans les cas des colonnes de grand diamètre (> 0,4 m). Les colonnes à garnissage sont souvent remplies par une succession de galettes de garnissage ayant chacune une hauteur de 20 cm et un diamètre égal au diamètre de la colonne dans le cas de petites colonnes.

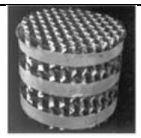
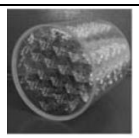
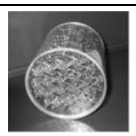
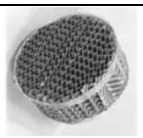
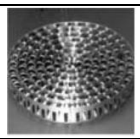
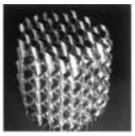
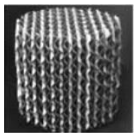
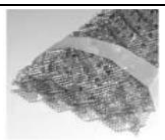
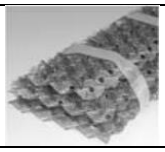
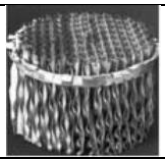
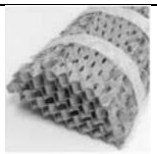
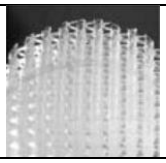
				
Mellapak 250 Y	Mellapak 350 Y	Mellapak 500 Y	Ralu Pak 250 Y	Fi-Pac
				
Montz B1-100 Y	Montz B1-200 Y	Montz B1-300 Y	Montz BS	Montz BSH
				
Montz A1	Montz A2	Montz A3	Sulzer BX	Durapack

Figure I.3. *Différents types et géométries de garnissage structuré (Mackowiak, 2010).*

Les garnissages structurés combinent à la fois une très grande surface d'échange (surface de garnissage allant jusqu'à 750 m^2/m^3) et un taux de vide élevé (jusqu'à 0.95). En plus, l'agencement des corrugations des plaques induit une minimisation des pertes de charge. Ces caractéristiques placent les garnissages structurés à la tête des choix de garnissages qui sont utilisés dans les procédés de traitement de gaz et spécifiquement le captage de CO_2. Le garnissage structuré Mellapak™ 250Y fabriqué par la société Sulzer reste une référence dans le domaine.

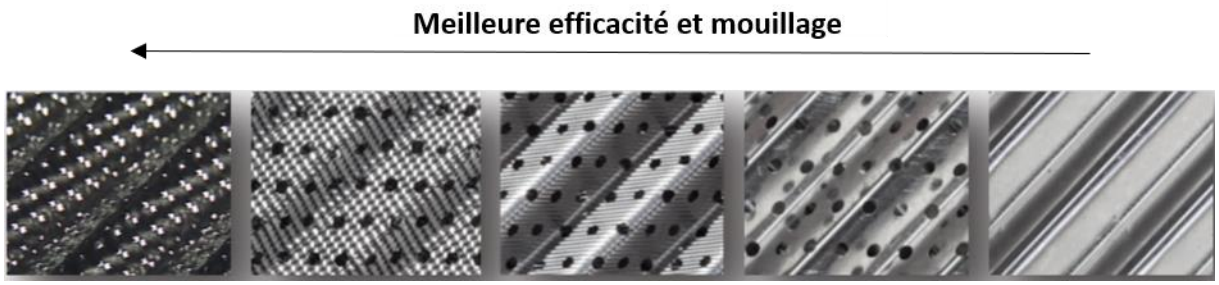


Figure I.4. *Différents types de surface de plaque de garnissage.*

I.2 Caractéristiques des écoulements en film mince

Un film mince liquide ruisselant sur une plaque inclinée ayant une géométrie quelconque est un phénomène observé dans notre vie quotidienne comme sur les fenêtres ou sur des trottoirs en pente durant les temps de pluie. Ces films liquides ayant une épaisseur allant de quelques microns à quelques millimètres se forment sous l'effet de la force gravitationnelle et sont modulés par la force du vent s'il y en a. La structure de ces écoulements est très variable. Prenons l'exemple d'un plan incliné à surface plane. Si on applique un écoulement initial uniforme et plat en tête de la plaque, selon les conditions, des instabilités peuvent induire la formation d'abord d'ondelettes transversales 2D puis d'ondes tridimensionnelles (**Figure I.5**).

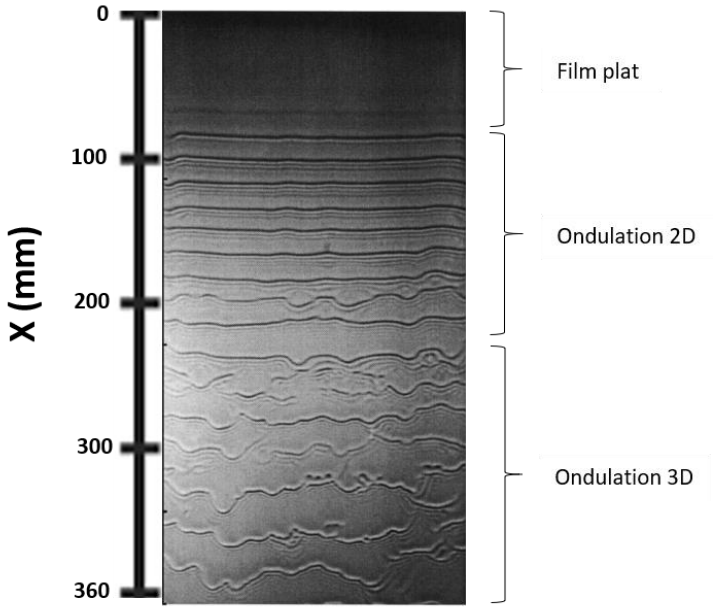


Figure I.5. *Image d'ondulation d'eau ruisselant sur une plaque plane verticale (Park & Nosoko, 2003).*

Ces structures de vague apparaissent et varient en fonction de plusieurs paramètres comme par exemple : la géométrie et la rugosité du support solide, l'existence ou pas d'un cisaillement de gaz à la surface libre du film liquide, l'inclinaison, et les paramètres physico-chimiques du fluide (viscosité μ, masse volumique ρ, tension de surface σ). Dans les colonnes à garnissage structuré et lorsque le liquide est introduit à un point précis de l'élément de garnissage, il ruissèle longitudinalement sous l'effet de la gravité et radialement sous l'effet des caractéristiques de surface telles que les ondulations, les perforations ou les microstructures. Plusieurs mécanismes d'écoulement liquide sont observés dans les garnissages structurés parmi lesquels les films minces (**Figure I.5**), les filets (**Figure I.6**) et les gouttelettes liquides (**Figure I.7**). Des études se sont portées sur l'analyse de la structure des filets liquides (Liao et al., 2022) et de l'impact du débit liquide et de la géométrie de la plaque sur l'épaisseur

du film et le taux de mouillage. La **Figure I.6** illustre la variation de la structure des filets liquides en fonction de la géométrie et de l'angle de corrugation des plaques d'étude (phase liquide en rouge ; phase solide en bleu marine).

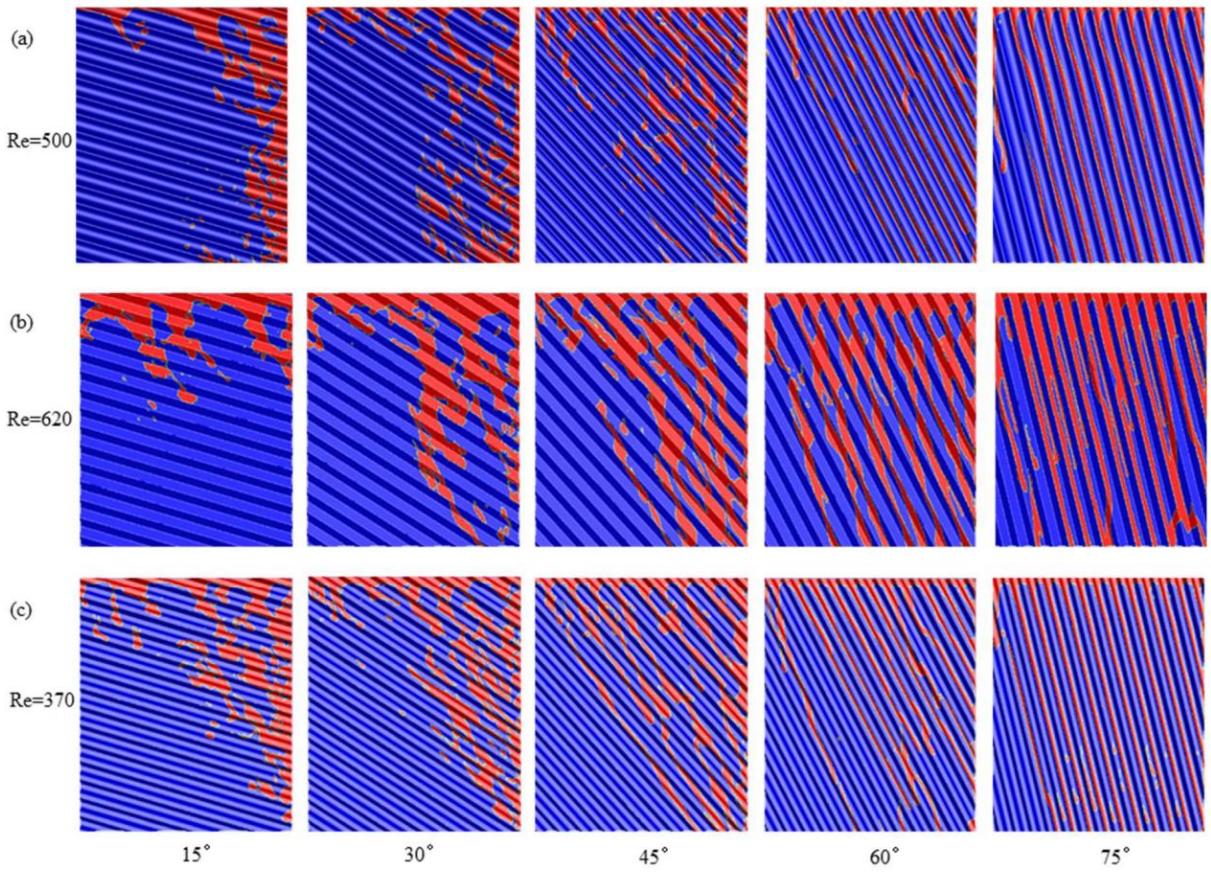


Figure I.6. *Effet des différents angles de corrugation sur trois différentes géométries de plaque sur la structure de l'écoulement (Liao et al., 2022).*

D'autres travaux comme par exemple ceux de Singh et al. (2017) ont étudié expérimentalement et numériquement l'évolution des instabilités des gouttelettes liquides en fonction des paramètres physico-chimiques, du débit liquide et de l'angle d'inclinaison.

Dans ce travail, on s'intéresse à l'écoulement en film mince comme celui illustré dans la **Figure I.5**. La dynamique ondulatoire de ces écoulements en film mince a attiré l'attention de nombreux chercheurs et un grand nombre d'articles de recherche ont été consacrés à ce sujet. Les études caractérisant l'hydrodynamique de ces films minces ont commencé avec les travaux de Nusselt en 1916. Nusselt, (1916) a décrit des écoulements avec une surface uniforme et a proposé une solution analytique qui sera décrite dans la prochaine partie et qui donne l'épaisseur du film et la vitesse du film liquide. Les études sur la dynamique des écoulements en film mince présentant des ondulations et plus particulièrement des ondes solitaires ont été initiées par les travaux de Kapitza (1965) qui a caractérisé un écoulement en film mince sur la paroi d'un tube vertical d'un diamètre de 2,5 cm. Le rapport important entre le rayon du tube et l'épaisseur du film permet de négliger l'effet de courbure et

d’assimiler le tube à une paroi plane verticale. Ils ont alors été les premiers à observer les profils des ondes et à mesurer leur vitesse de phase.

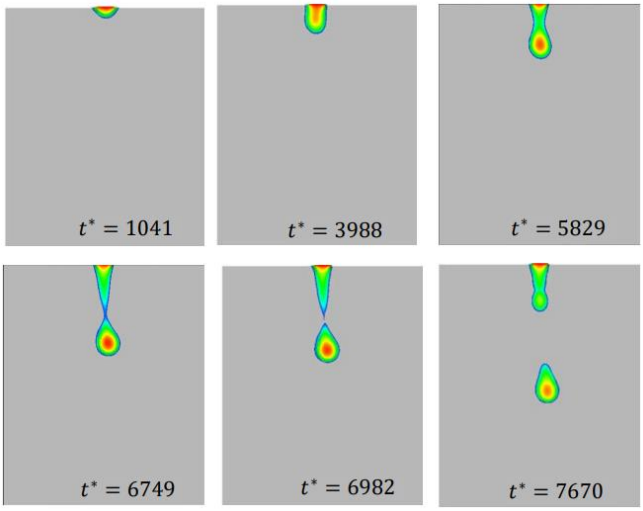
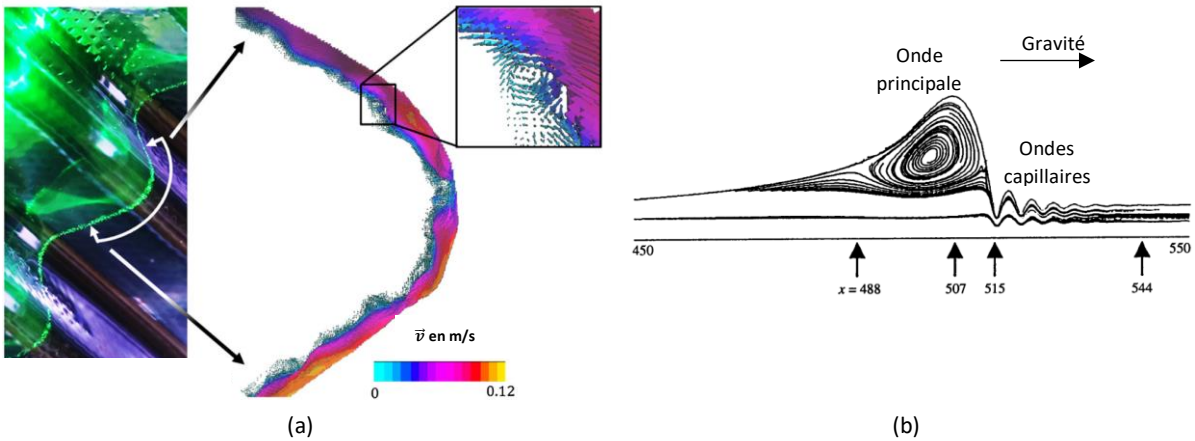


Figure I.7. *Evolution temporelle d'une goutte liquide en utilisant l'eau comme fluide d'étude (Singh et al., 2017).*

Ces travaux ont été poursuivis avec plusieurs nouveaux développements de la compréhension des écoulements liquides. Cette attention particulière provient des nombreux domaines d’activités concernés, en particulier dans les applications en génie chimique et génie des procédés. Parmi les exemples typiques d’application, on peut citer l’utilisation des films liquides dans les évaporateurs, les échangeurs de chaleur et les contacteurs gaz-liquide. Les écoulements en film liquide sont aussi utilisés dans les industries agroalimentaires dans la production par cristallisation du sucre par exemple. Ces films sont également utilisés comme couches lubrifiantes pour l’écoulement du pétrole brut dans les tuyaux ou comme moyen de protection thermique des parois de la chambre de combustion dans la conception de moteurs de fusée ainsi que dans beaucoup d’autres applications industrielles. L’utilisation de films ruisselants dans l’ensemble de ces procédés provient du fait que ces derniers présentent un moyen efficace de transfert interfacial de chaleur ou de masse dans les applications techniques car la faible épaisseur de film réduit les distances de transfert et permet d’étaler une faible quantité de liquide sur une surface importante.

Les écoulements en film mince présentent de fortes variations spatio-temporelles des caractéristiques hydrodynamiques dues à la formation d’ondes et d’instabilités de surface. Ces instabilités ont fait l’objet d’un grand nombre d’études qui ont montré que le transfert de chaleur ou de masse à travers un film ondulé peut augmenter de 10 à 100% par rapport à un film plat (Frisk & Davis 1972 ; Goren & Mani 1968). En ce qui concerne les efforts de recherche, de nombreux aspects liés à la complexité de ces écoulements n’ont pas été encore entièrement résolus, notamment l’identification et le fonctionnement des paramètres influençant la structure complexe de ces écoulements cités

précédemment, comme par exemple les paramètres physico-chimiques du fluide, la géométrie du support solide et l'existence ou non d'un contre-courant de gaz. Par structure on entend les caractérisations des ondulations, l'épaisseur du film liquide et sa vitesse, et par la suite les mouvements de recirculation au sein du film. Le fluide qui se mélange au niveau de la surface libre liquide et au sein du film liquide favorise les phénomènes de transfert. L'intensité de ces recirculations varie selon la géométrie du support solide (**Figure I.8.a**) et la structure des ondulations liquides (**Figure I.8.b**) par exemple. Chaque régime d'écoulement a un impact sur le transfert de matière qui dépend de l'épaisseur du film et du degré de turbulence.



(a) (b)

Figure I.8. *(a) Résultat expérimental illustrant les recirculations au niveau du film liquide dues à la présence des microstructures sur la surface de la plaque (Gerke & Repke, 2019).(b) Résultat numérique illustrant la structure pleinement développée du film liquide ruisselant sur plaque plane verticale avec présence de larges recirculations au niveau de la crête de l'ondulation principale (Miyara, 1999).*

Ces écoulements en film mince sont souvent décrits selon le régime de l'écoulement allant de l'écoulement laminaire à l'écoulement turbulent et la transition entre ces régimes est fonction des nombres de Reynolds et de Kapitza (**Eq. I.1** et **Eq. I.2**). Le premier représente le ratio des forces inertielles aux forces visqueuses et le second le ratio des forces de tension de surface aux forces inertielles gravitaires et visqueuses. Les régimes d'écoulement sur des surfaces inclinées sont classés selon Seikan et al. (1970) :

- Régime laminaire : surface libre liquide sans perturbation.
- Régime ondulé stable : mélange d'écoulement laminaire avec présence partielle d'ondulation liquide.
- Régime turbulent : écoulement chaotique et aléatoire par nature.

Ces différents régimes d'écoulement dépendent de la turbulence de l'écoulement définie par Re et Ka, de la gométrie de la plaque d'étude et de l'angle d'inclinaison. Ainsi les nombres adimensionnels utilisés dans cette étude en film mince sont les suivants :

$$Re = \frac{4\,\rho\,Q_L}{\mu\,b} \qquad \textit{Eq. I.1}$$

$$Ka = \frac{\sigma}{\rho\nu^{\frac{4}{3}}(g\sin\theta)^{1/3}} \qquad \textit{Eq. I.2}$$

Dans ces équations, Q_L (m^3/s) représente le débit liquide, b (m) la largeur de la plaque, θ (rad) l'inclinaison du support sur lequel le fluide ruissèle, ρ (kg/m^3) la masse volumique, μ la viscosité dynamique (Pa.s), ν la viscosité cinématique (m^2/s), σ la tension de surface (N/m) et g la force de gravité (m/s^2).

Au début du 20ème siècle, Nusselt s'est intéressé à l'écoulement en film mince sur plan incliné (**Figure I.9**). Il considère l'interface plane, l'épaisseur du film constante et la vitesse dirigée uniquement dans le sens de l'inclinaison. De ces hypothèses, il a prédit une solution analytique qui permet d'évaluer l'épaisseur du film et le profil de vitesse de l'écoulement sur l'épaisseur du film en régime établi.

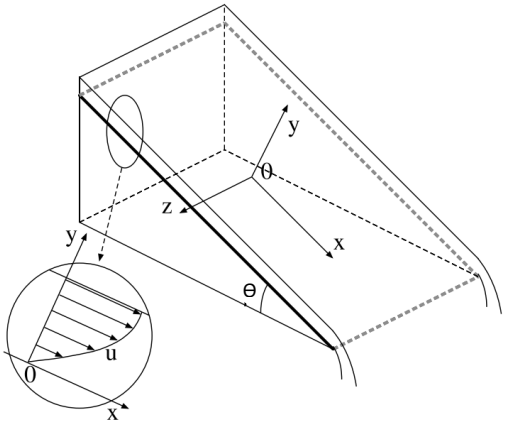


Figure I.9. *Schéma d'un écoulement en film mince uniforme sur plaque plane inclinée.*

Le film liquide est supposé avoir une interface lisse, les propriétés physico-chimiques constantes et le transfert de chaleur est négligeable dans la direction de l'écoulement (Nusselt, 1916). Les équations obtenues par Nusselt décrivant l'écoulement sont les suivantes :

$$U(y) = \frac{g\sin\theta\,\delta^2}{2\nu}\left[\frac{2y}{\delta} - \left(\frac{y}{\delta}\right)^2\right] \qquad \textit{Eq. I.3}$$

Le profil de vitesse permet de remonter à la vitesse moyenne et la vitesse à l'interface :

$$U_m = \frac{g\sin\theta\delta^2}{3\nu} \qquad \textit{Eq. I.4}$$

$$U_L = \frac{3}{2}\,U_m \qquad \textit{Eq. I.5}$$

Ensuite, l'épaisseur du film peut être déterminée en fonction de Re et de l'inclinaison du support solide :

$$\delta = (\frac{3\nu^2}{4g\sin\theta})^{\frac{1}{3}}(Re)^{\frac{1}{3}} \qquad \textit{Eq. I.6}$$

Dans ces équations, $U(y)$ (m/s) représente la vitesse du film liquide en fonction de l'épaisseur y, U_m (m/s) la vitesse moyenne du film mince, U_L (m/s) la vitesse à l'interface liquide du film, δ (m) l'épaisseur du film liquide.

De nombreuses études ont été menées sur l'écoulement en film liquide sur des plans inclinés ayant différentes configurations et différents angles d'inclinaison. Ces différentes inclinaisons permettent d'obtenir plusieurs régimes d'écoulement et de comparer les résultats de chaque régime. On peut notamment citer les travaux de Karapantsios & Karabelas (1995) et de Solomenko (2016) qui montrent que les équations de Nusselt sont vérifiées pour une interface gaz-liquide plane sans perturbation. Les solutions analytiques de Nusselt sont donc utilisées afin de vérifier les résultats obtenus expérimentalement uniquement pour un écoulement en film mince à épaisseur constante et non pas pour un écoulement ondulatoire.

I.3 Positionnement et apports de l'étude

Dans cette étude, on s'intéresse à la caractérisation de l'écoulement en film mince dans les trois régimes d'écoulement décrits précédemment (laminaire, ondulé stable et turbulent) ruisselant dans les garnissages structurés, dans le but d'améliorer leurs performances ou de mieux anticiper leurs comportements. Ces écoulements sont d'intérêt pour diverses applications. Dans cette étude on cible les garnissages structurés pour les colonnes d'absorption. Le dimensionnement de ce type de colonnes industrielles passe par la connaissance des propriétés de transfert de masse, de perte de charge et de capacité maximale de débits des garnissages. Ces propriétés dépendent de la qualité de l'écoulement liquide et de son interaction avec l'écoulement gaz.

La conception de nouvelles géométries de garnissages, et notamment de garnissages structurés, peut être réalisée en s'appuyant sur des calculs CFD (Computational Fluid Dynamics) ou sur la base de retours d'expérience. Des mesures doivent ensuite être réalisées pour déterminer les caractéristiques hydrodynamiques et de transfert de matière (Perte de charge ΔP, coefficient de transfert côté liquide K_L, coefficient de transfert côté gaz K_G, surface effective a_e, hauteur équivalente à un plateau théorique $HEPT$) sur des pilotes de laboratoire comme par exemple dans les travaux de Alix et al. (2010). Ces caractéristiques sont souvent déterminées de manière globale sur la base de mesures à l'entrée et à la sortie de la colonne à garnissage structuré voire à plusieurs positions le long de la colonne. Les prélèvements peuvent être ponctuels mais ne donnent pas accès à des informations locales à l'échelle d'un élément du garnissage. Les mesures sont analysées sur l'hypothèse d'un écoulement homogène.

Les caractéristiques mesurées pour chaque garnissage fabriqué sont à la base des corrélations qui permettent de dimensionner les colonnes à l'échelle industrielle. Les mesures sur maquettes posent des questions en termes d'extrapolation car elles sont réalisées avec des fluides modèles dont les propriétés physico-chimiques diffèrent des fluides industriels. En outre les températures et pressions sont souvent différentes de celles rencontrées dans des unités industrielles ce qui change d'autant plus les propriétés des fluides. Les modèles de la littérature sur les caractéristiques des garnissages ne sont pas cohérents en termes de dépendance à la viscosité et à la tension de surface, ce qui pénalise l'extrapolation. Pour illustrer l'ampleur des incertitudes, les tendances de trois modèles d'aire de contact souvent cités dans la littérature sont comparées : C. Wang (2015), Rocha (1996) et Billet & Schultes, (1999). Plus précisément, les valeurs calculées pour les fluides du laboratoire (maquettes de caractérisation) avec typiquement une tension de surface de 70 mN/m et une viscosité de 1 cP sont comparées à celles calculées pour un absorbeur industriel avec 50 mN/m et 4 cP (**Figure I.10**). Le garnissage structuré retenu est le Mellapak^{TM} 250Y qui est considéré comme bien caractérisé.

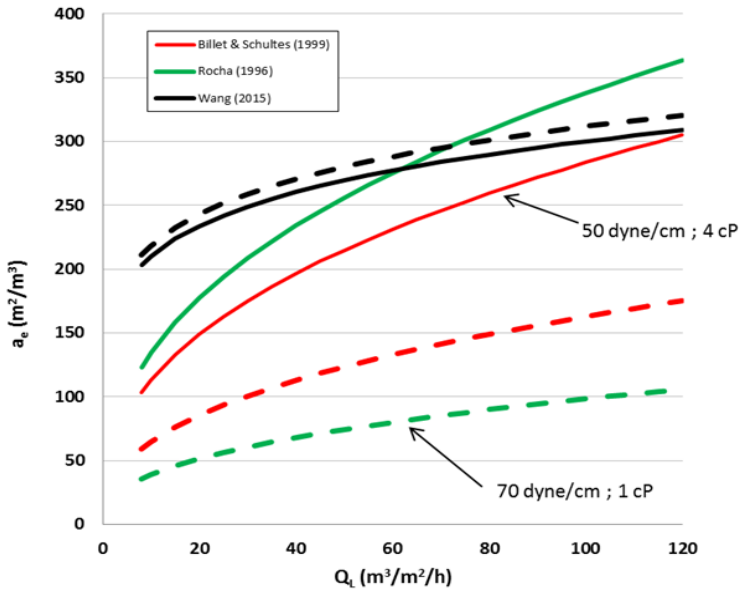
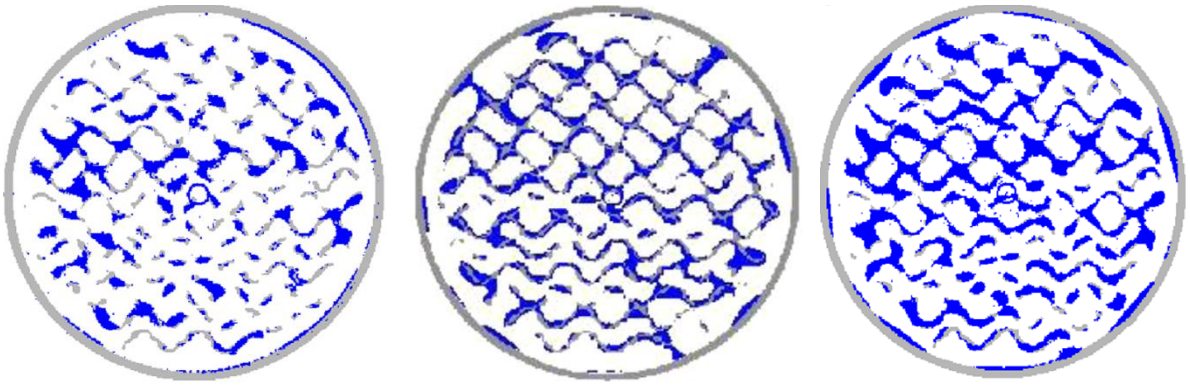


***Figure I.10**. Aires de contact calculées en fonction du taux d'arrosage. Corrélations de (Billet & Schultes, 1999), (Rocha et al., 1996) et (C. Wang, 2015) pour le Mellapak^{TM} 250Y. Lignes pointillées = cas maquette ; lignes continues = absorbeur industriel.*

On constate que les modèles ne s'accordent ni sur les valeurs absolues en un point de fonctionnement donné, ni sur les évolutions avec la physico-chimie du fluide. C. Wang (2015) donne des valeurs très comparables pour les deux fluides alors que Rocha et al. (1996) et Billet & Schultes (1999) montrent des écarts d'un facteur 2 à 3 avec des valeurs particulièrement faibles pour le fluide à faible viscosité utilisé sur maquettes. Le constat est similaire lorsqu'on compare les coefficients de transfert côté gaz et liquide calculés aux conditions industrielles et maquettes, une différence d'un facteur 2 est observée.

Les incertitudes sur l'extrapolation des modèles incitent à mieux comprendre la complexité des écoulements sur les surfaces de garnissage d'un point de vue local à l'échelle des plaques constitutives et d'étudier leur comportement vis-à-vis de la viscosité et de la tension de surface. Dans cette optique, Janzen et al. (2013) ont étudié l'impact de la viscosité sur la structure de l'écoulement au sein du garnissage MellapakPlus^{TM} 752Y. Ils ont utilisé une méthode optique non intrusive basée sur la tomographie aux rayons X. Leurs résultats expérimentaux (**Figures I.11.a**, **I.11.b** et **I.11.c**) montrent l'hétérogénéité notable de l'écoulement liquide dans les garnissages structurés allant jusqu'à l'engorgement des colonnes lorsque la viscosité augmente. Il peut en résulter une distribution spatiale des coefficients de transfert de matière liée à cette hétérogénéité. Cette distribution spatiale des coefficients de transfert peut être à l'origine des fortes disparités entre les résultats expérimentaux obtenus sur les maquettes du laboratoire et les résultats industriels. Afin de comprendre l'origine de ces disparités, il est important de comprendre les variations de l'hydrodynamique à l'échelle d'une tôle de garnissage (**Figure I.1**), voire à l'échelle de la région entre deux points de contact des tôles qui est la plus petite zone caractéristique.



(a) *(b)* *(c)*

Figure I.11. *Influence de la viscosité du fluide sur la distribution liquide dans une colonne à garnissage structuré (a) 1 mPa.s (b) 10 mPa.s (c) 20 mPa.s ; en blanc l'air, en gris le garnissage et en bleu le liquide* (Janzen et al., 2013b).

Les études à échelle locale (échelle de la plaque de garnissage) vont permettre de comprendre les variations locales de l'hydrodynamique qui sont difficilement exploitables en raison de l'assemblage mécanique des garnissages. L'hydrodynamique varie en fonction des conditions opératoires et de la physico-chimie des fluides.

Cette compréhension est fondamentale également pour améliorer la modélisation des écoulements diphasiques. L'influence de la morphologie du support solide, de son inclinaison, des paramètres physico-chimiques du fluide, du cisaillement d'un contre-courant gaz et du débit de ce dernier sont à étudier.

L'instabilité des écoulements en film mince sur plaque plane à différentes inclinaisons a été largement étudié par le passé. Takahama & Kato (1980) ont caractérisé l'écoulement en film mince sur une plaque plane verticale en utilisant l'eau comme fluide d'étude. Dans leur étude, ils ont montré que l'amplitude

des ondulations ainsi que leur vitesse augmentent avec l'augmentation du nombre de Re et la distance longitudinale. Drosos et al. (2004) ont conduit des expériences afin d'étudier l'impact de la tension de surface sur la formation des ondulations liquides, l'épaisseur du film et la vitesse des vagues sur une plaque plane verticale.

Lel et al. (2005) ont décrit l'épaisseur du film liquide et la vitesse des vagues pour des fluides visqueux sur une plaque plane verticale. Ils ont montré que l'épaisseur du film augmente en augmentant la viscosité. Njifenju et al. (2013) ont décrit l'évolution des instabilités d'un écoulement en film mince sur une plaque plane et ils ont montré que l'épaisseur du film diminue avec l'augmentation de l'angle d'inclinaison θ. Kofman et al. (2017) ont étudié l'impact de la vitesse du contre-courant gaz sur la formation des ondulations liquides, sur leur fréquence et la vitesse de ces ondulations liquides. L'ensemble de ces études ont été effectuées en appliquant des techniques de mesures ponctuelles qui permettent de déterminer l'épaisseur du film ou la vitesse en un seul point de la plaque. D'autres études comme celle de Vitry (2011) qui a suivi l'évolution de l'épaisseur du film liquide sur une plaque plane en utilisant l'eau comme fluide d'étude à trois inclinaisons différentes (θ = 10°, 20° et 30°), ont étudié l'écoulement sur une large fenêtre de mesure. Dans ses travaux, il a montré que l'écoulement est fortement déstabilisé en augmentant l'inclinaison de la plaque. Il a montré également que le cisaillement du contre-courant gaz a comme effet d'augmenter l'amplitude des ondulations principales.

Ces travaux ainsi que d'autres (Wei et al., 2020 ; Patnaik and Perez-Blanco, 1996 ; Åkesjö et al., 2018) se sont concentrés sur des écoulements en film mince ruisselant sur plaque plane. Cependant, peu d'attention a été accordée à l'étude de l'hydrodynamique des films sur des surfaces complexes comme celles du garnissage structuré. De telles géométries complexes peuvent présenter des difficultés expérimentales majeures. Néanmoins, ces géométries peuvent avoir un effet significatif sur la morphologie de l'écoulement (**Figure I.11**) comme montré dans les travaux de Gerke & Repke (2019). Dans leur étude, l'effet de la topologie des plaques de garnissage a été étudié sur l'épaisseur du film et la vitesse du film. D'autres travaux de recherche se sont intéressés à l'impact de la géométrie de la surface sur laquelle le fluide ruissèle comme Janzen et al. (2013) et Solomenko (2016) par exemple. Cependant, peu d'attention a été accordée à l'effet des paramètres physico-chimiques du liquide sur l'écoulement en film mince. Toutes ces études peuvent être classées en trois catégories : premièrement, celles qui se concentrent sur l'hydrodynamique des écoulements en film mince sur une plaque plane verticale, en utilisant des fluides modèles tels que l'eau, sans considérer l'effet des propriétés physico-chimiques. Deuxièmement, celles qui se concentrent sur l'effet de la topologie de la surface, mais ne considèrent pas l'effet des propriétés physico-chimiques du fluide. Troisièmement, celles qui se concentrent sur l'impact des propriétés physico-chimiques, mais n'incluent pas l'effet de la topologie de la surface.

Les études précédentes ont montré l'effet d'un seul type de paramètre sur l'hydrodynamique du film liquide. Dans ce travail, l'influence de tous les paramètres combinés (propriétés physico-chimiques du fluide, état de surface (plane, corruguée), contre-courant gaz, angle d'inclinaison θ, débits liquides Q_L et gaz Q_G) a été explorée. Les variations à l'échelle locale de l'hydrodynamique (épaisseur du film δ et vitesse à l'interface U_L), l'écoulement en film mince et le transfert de matière sont étudiés sur une large fenêtre de mesure (300×250 mm^2). Cette grande fenêtre de mesure permet d'analyser spatialement les variations des ondulations à partir de mesures de l'épaisseur du film et de la vitesse à l'interface, en appliquant les méthodes de mesure adaptées et qui seront présentées dans le prochain chapitre. Plusieurs géométries de plaque solide ont été étudiées allant d'une plaque plane jusqu'à une géométrie de plaque similaire à la tôle de garnissage Mellapak™ 250Y. Outre la compréhension des phénomènes, les résultats expérimentaux obtenus constitueront une base de données riche pour la validation de simulations numériques 3D d'écoulements de film mince liquide, surtout dans le cas de géométries complexes comme celle du Mellapak™ 250Y.

Chapitre II: Etat de l'art des techniques de mesure

Ce chapitre présente les métrologies qui peuvent être appliquées afin de mesurer l'ensemble des paramètres visés : épaisseur du film, vitesse à l'interface gaz liquide et transfert de matière à échelle locale. Le but est de les relier ensuite entre elles. La première section (II.1) présente l'ensemble des méthodes pour mesurer les épaisseurs de film. Elles peuvent être classées en quatre catégories : méthodes électriques, méthodes acoustiques, méthodes optiques et méthodes nucléoniques. La deuxième section (II.2) aborde les méthodes de mesures de vitesse à l'interface liquide. La troisième et dernière section (II.3) présente les méthodes de mesure du transfert de matière. Pour chaque méthode, on présente ses avantages et ses limitations afin de pouvoir déterminer la technique la plus adéquate pour notre application.

II.1 Epaisseur du film liquide

L'épaisseur du film liquide est un paramètre critique pour élaborer des modèles multi-échelles et notamment un modèle de mouillage plus précis qui prenne en compte l'influence de la forme des plaques (ondulations, microstructures et points de contact), les propriétés physico-chimiques du liquide utilisé et la vitesse du fluide. Chaque méthode de mesure de l'épaisseur du film présente des avantages et des inconvénients ainsi que des gammes de mesure d'épaisseur (allant jusqu'à quelques millimètres). Le choix des méthodes est basé sur plusieurs critères comme l'applicabilité, la fiabilité et la précision, et il est le résultat d'une recherche bibliographique exhaustive.

II.1.1 Méthode électrique

Mesure par conductance : cette technique consiste à mesurer la conductance électrique du liquide (**Figure II.1**). La méthode est basée sur l'utilisation de deux électrodes implémentées de part et d'autre du film liquide. Une électrode joue le rôle de l'émetteur et la deuxième est réceptrice. La mesure du courant généré entre les électrodes permet de quantifier l'épaisseur du film liquide. Tiwari et al. (2014) ont employé cette méthode afin de mesurer trois gammes d'épaisseur entre 0-600 µm, 400-1300 µm et 1000-3500 µm avec une résolution spatiale de 2×2 mm^2, 4×4 mm^2 et 12×12 mm^2 respectivement. Les mesures ont été enregistrées à une fréquence de 3.2 kHz. Les avantages de cette méthode résident dans la simplicité de l'implantation des sondes, mais cela nécessite une modification du support solide ce qui peut amener à une perturbation de l'hydrodynamique du film mince. Le faible coût des sondes à utiliser est un facteur positif de cette méthode. En plus de la nécessité de modification du support solide afin d'implanter les sondes, il existe quelques contraintes qui limitent l'utilisation de cette méthode et qui peuvent être résumées de la façon suivante (Tiwari et al., 2014) :

- L'épaisseur du film liquide ne peut être mesurée que si celle-ci est plus petite que la distance inter-électrodes sinon on arrive à une saturation.
- Le liquide doit être conducteur d'électricité.
- La sensibilité à la température est élevée.

Mesure par capacitance : la mesure d'épaisseur par capacitance est basée sur le même principe que la conductance, la seule différence est que la grandeur mesurée est la capacitance. Bonilla-Riaño et al. (2019) ont appliqué cette méthode pour mesurer des épaisseurs de film liquide allant de 400 à 2200 µm avec une résolution spatiale de 4 × 4 mm^2. Les mesures d'épaisseur de films liquides ont été comparées avec des résultats de mesure obtenus par une autre méthode d'imagerie et la déviation des valeurs entre la première méthode et la seconde est de moins de 20 %. De même que la méthode de mesure de conductance, cette méthode présente une limitation par rapport à la résolution spatiale vu que celle-ci est directement liée à la distance inter-électrodes. De plus, cette méthode nécessite aussi une modification du support solide et elle est aussi sensible à la température.

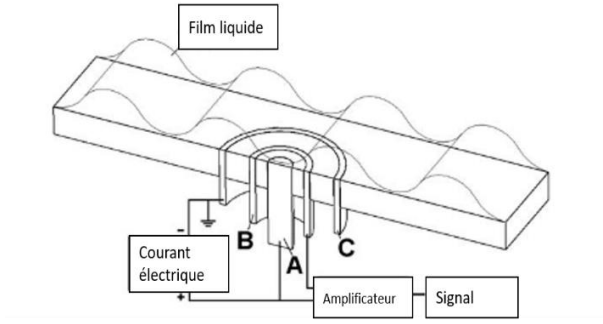


Figure II.1. *Schéma du principe des méthodes électriques (Fukano, 1998).*

II.1.2 Méthodes acoustiques

Selon la littérature qui traite de l'utilisation de ces méthodes, les contraintes d'utilisation limitent largement leurs applications. Cette méthode est fondée sur l'utilisation d'un transducteur qui émet des impulsions ultrasoniques qui se propagent perpendiculairement au support solide. À l'interface support-liquide et à l'interface gaz-liquide des échos sont générés en raison du changement d'impédance acoustique des substances. Le temps de propagation de l'impulsion ultrasonore dans le film liquide est déterminé par la différence de temps entre les signaux des deux échos (**Figure II.2**). La limitation de cette méthode réside dans le fait que le transducteur doit être perpendiculaire à l'interface gaz-liquide sinon les ondes réfléchies ne seront pas captées. Wang et al. (2019) ont mené des recherches sur l'épaisseur du film en utilisant une méthode d'onde ultrasonore et ils ont mesuré des épaisseurs allant de 1 à 6,5 mm avec une marge d'erreur de 2,7% par rapport à des mesures effectuées par une sonde de conductance. L'avantage de cette méthode est qu'elle est non intrusive et ne nécessite pas de modification du support solide. La limitation de cette méthode est qu'elle n'est

pas applicable dans le cas d'un film liquide très mince (en dessous de 1 mm) puisque les réponses des deux échos se superposent.

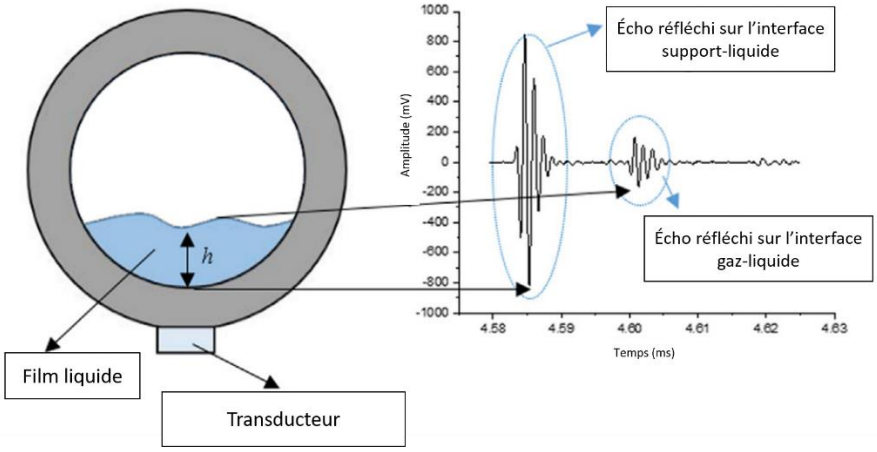


Figure II.2. *Schéma du principe des méthodes acoustiques (Wang et al., 2019).*

II.1.3 Méthodes optiques

Les méthodes de rayonnement électromagnétique à petites longueurs d'onde (rayon gamma, neutrons, rayon-X) sont basées sur l'atténuation de l'intensité du rayonnement subit en traversant l'écoulement diphasique. Les matériaux absorbent une certaine partie de ces rayons et cette absorbance dépend de la nature des matériaux. Comme l'atténuation dans les liquides et les solides est plus élevée que dans les gaz, le degré de perte d'intensité du rayonnement permet de remonter à l'épaisseur du film. L'application de ces méthodes de mesures nécessite l'utilisation d'un convertisseur qui est une plaque émettant de la lumière lorsqu'elle est frappée par le rayonnement. Des caméras à grande vitesse sont utilisées afin de capturer la distribution de la lumière sur la plaque ou le support solide.

Les méthodes de détection de l'interface : ces méthodes sont basées sur la détection de l'interface gaz-liquide et de l'interface liquide-solide en utilisant une source lumineuse et une caméra. Cette source lumineuse émet une lumière généralement sous forme de faisceau laser qui se réfléchit sur la surface du film liquide. Cette lumière réfléchie est détectée par une caméra. La même procédure de détection de l'interface liquide est appliquée pour la détection de la surface de la plaque ou tube solide sur lequel le fluide ruissèle. Ces deux détections permettent d'obtenir deux informations nécessaires pour le calcul de l'épaisseur du film liquide. La première représente la distance z_r qui décrit la distance entre la source laser et le support en absence de tout liquide, la seconde est la distance entre la source laser et l'interface gaz-liquide z_f. La différence entre ces deux distances permet de quantifier l'épaisseur du film.

Les méthodes de détection de l'interface sont diverses et leurs applications sont très variées. Pour résumer ces méthodes, elles sont classées en deux catégories : les méthodes de réflexion interne et les méthodes de réflexion externe. Les méthodes de réflexion interne sont basées sur l'utilisation d'un support transparent. Lorsque le rayonnement passe d'un milieu transparent à un autre, une partie de son intensité est réfléchie par l'interface et une autre partie passe vers le second milieu, selon un angle de réfraction mesuré à partir d'une ligne normale à l'interface. Lorsque le rayonnement se propage d'un milieu à un autre ayant un indice de réfraction inférieur au premier, le rayonnement est totalement réfléchi dans le milieu incident pour des angles d'incidence supérieurs ou égaux à l'angle de réflexion critique. Un tel phénomène est illustré dans la **Figure II.3** :

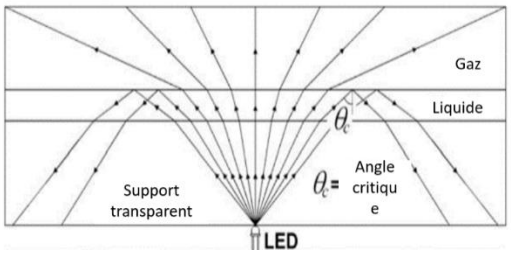


Figure II.3. *Schéma du principe de la méthode de réflexion interne (Shedd & Newell, 1998).*

Il est ainsi possible d'estimer l'épaisseur du film en se basant sur les indices de réfraction du support solide, de la phase liquide et gazeuse, les angles de réfraction, la loi de Snell-Descartes. Les travaux de Qiu et al. (2005) représentent un exemple de l'application de la méthode de réflexion interne. Ils ont mesuré l'épaisseur du film liquide lors du passage d'une bulle en forme de bouchon dans un canal circulaire ayant un diamètre interne de 750 µm. Ils ont mesuré des épaisseurs allant de 9 à 30 µm.

La méthode de réflexion externe ne nécessite pas l'utilisation d'un support transparent comme illustré sur la **Figure II.4**. Åkesjö et al. (2018) ont appliqué la méthode de réflexion externe pour mesurer l'épaisseur d'un film liquide allant de 0,3 mm à 1,3 mm et s'écoulant à la surface d'un tube de longueur 0,8 m et de diamètre 60 mm avec une précision de ± 0,1 mm.

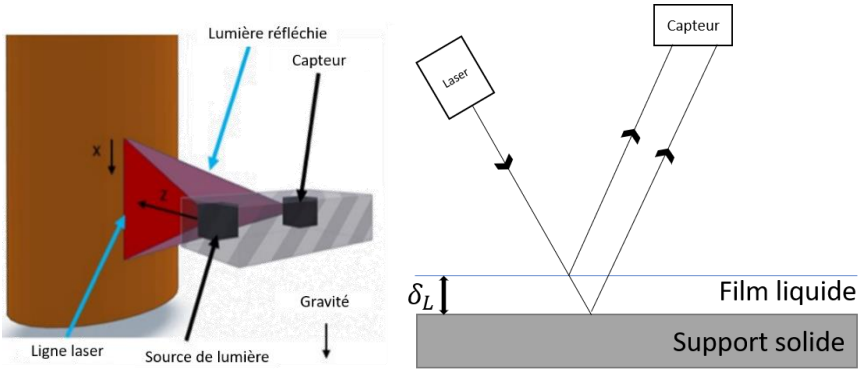


Figure II.4. *Schéma du principe de la méthode de réflexion externe (Åkesjö et al., 2018).*

La méthode de réflexion interne nécessite l'utilisation d'un support transparent ce qui limite son utilisation dans le cas des surfaces complexes. Une autre difficulté peut être observée pour les

méthodes de réflexion interne et externe lors de l'apparition de fortes perturbations au niveau de la surface de la phase liquide. Ces perturbations provoquent une difficulté puisque le capteur n'arrive pas à recevoir le faisceau réfléchi.

Absorption de la lumière : l'ajout d'un colorant à un liquide augmente l'absorption de la lumière à des longueurs d'ondes spécifiques. Lorsque ce liquide est éclairé par une source de lumière une partie de cette lumière sera réfléchie, une partie sera transmise et une autre sera absorbée. L'épaisseur du film liquide est directement liée à l'absorption de la lumière par l'équation de Beer-Lambert (Mendez et al., 2016) :

$$\delta(x,z,t) = \frac{1}{\gamma}\ln\left(\frac{I_r(x,z)}{I_t(x,z,t)}\right) = \frac{A(x,z,t)}{\gamma} \qquad \textit{Eq. II.1}$$

γ représente le coefficient d'absorption déterminé par calibration, I_r l'intensité de référence de la lumière en absence de liquide qui nous permet d'obtenir l'image de référence, I_t l'intensité de lumière transmise par le liquide. Le nombre adimensionnel A décrit l'absorbance. La **Figure II.5** présente le principe de la méthode de l'absorption de la lumière.

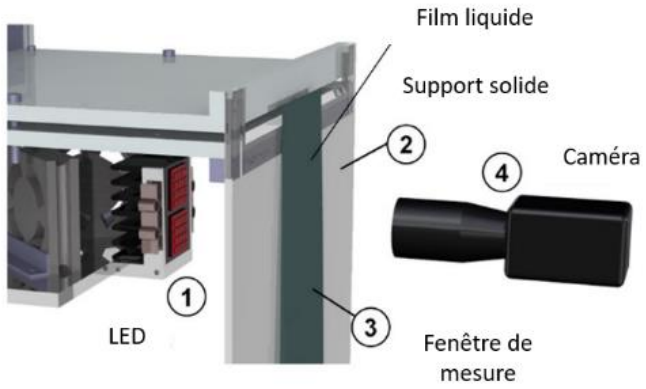


Figure II.5. *Schéma du principe de la méthode d'absorption de la lumière (Mendez et al., 2016).*

Mendez et al. (2016) ont étudié l'épaisseur d'un film liquide sur une plaque verticale en utilisant la méthode d'absorbance liquide et avec un pourcentage d'erreur de 1%. Gosset & Buchlin (2007) ont étudié l'instabilité d'un écoulement d'un fluide visqueux autour d'un cylindre en rotation trempé dans un bain d'huile. L'instabilité a été générée en perturbant l'écoulement par un souffle d'air sur le film. Ils ont observé la variation de l'épaisseur sur une fenêtre de mesure de 0,3 × 0,3 mm^2. La gamme d'épaisseurs mesurées est de 100 à 500 µm avec un pourcentage d'erreur de 8%. Les résultats obtenus en utilisant cette méthode sont d'une grande précision lorsque l'éclairage se fait de manière uniforme sinon des corrections doivent être mises en place. Des difficultés apparaissent lorsque les mesures sont faites sur des plaques à topologie complexe.

Méthode d'ombroscopie : l'application de cette méthode est basée sur le principe que lorsque la lumière n'est pas perpendiculaire à l'interface, une partie de cette lumière est réfléchie et une autre

est réfractée. Cette distorsion crée une variation spatiale de l'intensité lumineuse. Cette variation est détectée par un transducteur optique ce qui permet de quantifier l'épaisseur du film. Ce principe a été utilisé par Zhang et al. (2000) pour des mesures d'épaisseur de film liquide comme présenté dans la **Figure II.6**. Le faisceau laser est bloqué ce qui génère une région d'ombre. L'intensité du faisceau laser capté par la diode diminue avec l'augmentation de la région d'ombre et cette dernière augmente avec l'augmentation de l'épaisseur du film. La gamme des épaisseurs mesurées est entre 0,4 et 0,9 mm.

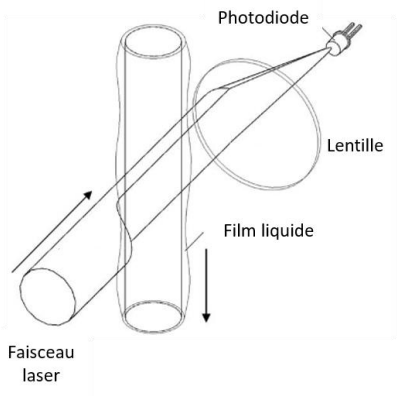


Figure II.6. *Schéma du principe de la méthode d'ombroscopie (Qiu et al., 2005).*

De même que pour la méthode de réflexion interne, pour pouvoir appliquer cette méthode dans le cas de notre plan d'expérience le support solide doit être transparent.

Méthodes de l'intensité de fluorescence : Les méthodes basées sur l'intensité de fluorescence sont capables de fournir des informations précises sur le profil du film liquide. Leur principe est lié à un ajout d'une substance fluorescente qui sera mélangée au liquide avec l'hypothèse que ce mélange est homogène. Cette substance a comme effet de faire passer le liquide d'une forme incolore à une forme colorée lorsqu'il est irradié par une source lumineuse à longueur d'onde spécifique. Cette longueur d'onde spécifique représente la longueur d'onde d'excitation de la substance fluorescente. Une fois le liquide éclairé avec une lumière ayant la longueur d'onde λ_e, il absorbe une partie de cette énergie lumineuse. Cette absorption provoque l'excitation des molécules de la substance ajoutée. Cette excitation a comme effet de faire passer la molécule d'un état stable S_0 à un état excité S_n dont le niveau d'énergie est supérieur au niveau fondamental. Le retour de la molécule de cet état d'excitation à l'état fondamental peut se faire suivant plusieurs chemins dont celui qui nous intéresse le plus : la fluorescence.

L'intensité de la fluorescence est proportionnelle au nombre de molécules de fluorophore, donc à l'épaisseur du film liquide. La longueur d'onde de fluorescence est différente de la longueur d'onde incidente liée à l'éclairage, ce qui permet de filtrer optiquement le signal de fluorescence au niveau du capteur de la caméra et de ne pas collecter la lumière incidente réfléchie.

Makarytchev et al. (2001) ont employé cette technique pour mesurer l'épaisseur de films liquides minces s'écoulant à la surface d'un cône en rotation. Des épaisseurs de film liquide de 0,05 à 1,92 mm ont été déterminées. Les expériences ont été réalisées pour une solution aqueuse d'un colorant avec une concentration de substance fluorescente de 50 mg/L. Une source de lumière ultraviolette a été utilisée pour exciter et faire apparaitre la fluorescence. Ces méthodes sont largement utilisées car leur mise en œuvre est simple : il suffit de faire correspondre un niveau de gris à une épaisseur de film par une courbe de calibration. Cette méthode permet de mesurer l'épaisseur du film liquide dans l'ensemble de la fenêtre de mesure contrairement aux méthodes acoustiques et électriques qui sont des méthodes ponctuelles.

Les contraintes de cette méthode sont :

- Avoir un éclairage qui permet l'excitation lumineuse de la molécule de fluorescence à une longueur d'onde spécifique.
- Disposer de supports solides non réfléchissants pour éviter les erreurs liées à la réflexion de la lumière trop conséquente.
- Minimiser la modification des propriétés physico-chimiques du fluide par l'ajout de la substance fluorophore.

Méthode de déplacement laser : Takamasa & Hazuku (2000) ont adapté cette méthode afin d'obtenir des mesures précises de l'épaisseur d'un fluide en mouvement. Dans leur étude, les mesures sont effectuées pour un écoulement de film mince sur une plaque verticale. Un schéma de la méthode est présenté dans la **Figure II.7**.

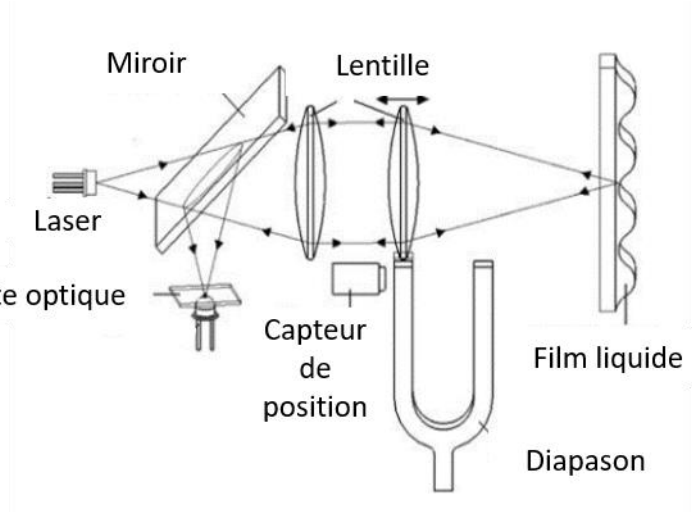


Figure II.7. *Schéma du principe de la méthode de déplacement laser (Takamasa & Hazuku, 2000).*

Cette technique consiste à faire passer un faisceau laser par un miroir semi-transparent et une lentille d'objectif consécutivement. Ensuite, la lumière est réfléchie par les deux interfaces (interfaces solide-liquide et liquide-gaz). Cette lumière revient et repasse par la lentille et se réfléchit sur le miroir et atteint le capteur. Ce capteur ne se met en fonctionnement que lorsqu'il reçoit la lumière laser

réfléchie sur l'interface ce qui n'arrive que si le point focal de la lentille est à l'interface. Un diapason à fréquence fixe de 700 kHz permet de déplacer la lentille et donc le point focal. Ce déplacement est enregistré par un capteur de position de grande précision. L'épaisseur du film liquide est déterminée par la différence des positions des interfaces déterminées grâce à la lumière qui s'est réfléchie sur les deux interfaces solide-liquide et liquide gaz. La méthode de mesure confocale chromatique est basée sur le même principe mais en utilisant une source de lumière blanche ponctuelle au lieu du laser. Cette source de lumière est divisée en fonction des différentes longueurs d'onde et de distance focale en utilisant une lentille. Les différentes composantes spectrales de la lumière focalisée à différentes épaisseurs du film permettent d'évaluer l'épaisseur du film et la variation de l'épaisseur peut être captée en analysant les spectres lumineux réfléchis par le liquide. Lel el al. (2005) ont appliqué cette méthode pour mesurer des épaisseurs allant de 0,2 à 2 mm.

Interférométrie : l'interférométrie est basée sur les interférences optiques. On part d'un faisceau cohérent qui est divisé en deux parties. Chaque partie parcoure un trajet de longueur différente jusqu'à un point d'interférence. Elles génèrent alors un signal d'interférence qui peut être mesuré dans le temps. La modulation de l'intensité d'interférence est fonction de la modulation du trajet optique. Le film liquide joue le rôle de séparateur de faisceau et induit des trajets de longueur différente. Comme la longueur d'onde de la lumière visible est très courte, il est possible de détecter de faibles variations de distance entre les chemins optiques des deux faisceaux qui produiront des variations notables dans le diagramme d'interférence.

L'interférométrie permet d'effectuer des mesures extrêmement précises et d'étudier des films extrêmement fins. Han et al. (2011) ont utilisé cette méthode pour observer des épaisseurs entre 2 et 20 µm (**Figure II.8**) avec une précision de ± 4 %.

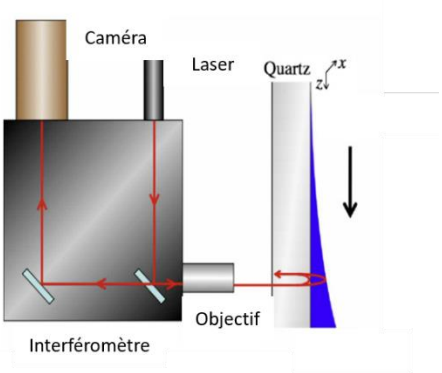


Figure II.8. *Schéma du principe de la mesure d'épaisseur d'un film mince par interférométrie (Han et al., 2011).*

Dans leur application la taille de la fenêtre est entre de 0.66 × 0.88 mm^2 et la fréquence d'acquisition est de 1kHz. Les avantages de cette méthode résident dans la possibilité de mesurer des épaisseurs extrêmement faibles mais la fenêtre de mesure reste très étroite et les mesures sur l'ensemble du

champ de l'écoulement sont impossibles. Un inconvénient majeur de cette méthode est qu'elle est limitée à de très faibles épaisseurs (20 µm maximum) et nécessite un support transparent.

Mesure par fibre optique : un faisceau lumineux est envoyé par l'intermédiaire de la fibre optique perpendiculairement au film liquide et l'intensité du faisceau est mesurée après qu'il a traversé le film. Une partie de ce faisceau est réfléchie sur l'interface gaz-liquide et revient en sens inverse et repasse dans un photodétecteur. Ces étapes permettent de comparer l'intensité du faisceau envoyé et celui réfléchi. La mesure de l'intensité du faisceau permet de remonter à la quantité de matière traversée par celui-ci et donc à l'épaisseur du film liquide (Vitry, 2011).

II.1.4 Méthodes nucléoniques

Absorption de rayons X : La méthode fondée sur l'absorption de rayons X n'a pas été largement appliquée. Cela s'explique par le fait que les instruments de mesures, et notamment la source de rayon X, sont coûteux et nécessitent des mesures de protection beaucoup plus contraignantes que d'autres méthodes. Solesio (1978) a appliqué cette méthode pour mesurer l'épaisseur d'un film liquide sur une plaque inclinée et les résultats obtenus ont une précision de 1%. La méthode d'absorption de rayons X a été utilisée dans les travaux de Janzen et al. (2013b) afin de visualiser la structure de l'écoulement dans une colonne à garnissage structuré. Dans leurs travaux ils ont étudié l'impact de la viscosité et de la charge liquide sur la distribution du liquide sur les plaques du garnissage, sur l'aire interfaciale et sur la quantité de liquide retenu. La tomographie par rayon X a été utilisée par Viva et al. (2011) sur des garnissages Katapak-SP. Dans leur étude, l'évolution de la rétention liquide dans ce garnissage a été mesurée en fonction du taux d'arrosage. La contrainte de cette méthode est qu'elle est onéreuse.

Comme pour les autres méthodes de mesure nucléoniques par rayon gamma et neutrons, le point faible est dans la taille restreinte de la fenêtre de mesure et la difficulté d'avoir accès aux grands instruments via des centres comme L'Institut Paul Scherrer.

II.1.5 Discussion

Dans ce chapitre, les méthodes qui peuvent être appliquées pour la mesure de l'épaisseur du film liquide ont été expliquées. Les avantages et les inconvénients de chaque méthode ont été détaillés ce qui nous a permis de faire le choix de la méthode retenue pour notre étude. Le **Tableau II-1** récapitule l'ensemble des métrologies avec leurs avantages et inconvénients. Les méthodes intrusives (mesure par conductance, capacitance) ne sont pas adaptées à notre étude en raison de l'impact de ces méthodes sur l'hydrodynamique de l'écoulement. Un autre inconvénient est l'impossibilité de déplacer la zone de mesure et donc la nécessité de prévoir les points de mesure à la conception. Pour toutes ces raisons, ces méthodes ont été écartées. Les méthodes nucléoniques ne sont pas envisageables dans notre laboratoire à cause de la contrainte de protection et du coût élevé. Les

méthodes de mesure par fibre optique et l'ensemble des méthodes basées sur la réflexion et la diffusion de lumière par le support sont rejetées vu qu'elles nécessitent un support solide transparent alors que les plaques utilisées dans le cadre de la thèse sont en aluminium. Dans cette thèse, on s'intéresse à la mesure de l'épaisseur de film liquide sur des surfaces complexes mais surtout sur des surfaces corruguées, ainsi les méthodes qui présentent des limites de mesure sur des surfaces non planes sont aussi écartées.

C'est alors la méthode basée sur l'intensité de fluorescence qui est la métrologie qui cadre le plus avec nos attentes. Cette méthode est non-intrusive et permet de mesurer l'épaisseur d'un film mince sur des plaques planes et corruguées. Cette méthode est considérée comme simple si on la compare aux autres, et elle a été déjà appliquée au laboratoire pour des expériences ayant le même but avec une bonne précision (± 5%) (Vitry, 2011).

***Tableau II-1** : Résumé de l'ensemble des méthodes avec leurs avantages et inconvénients.*

Méthode	Principe	Gamme d'épaisseur	Précision	Avantages	Inconvénients
Mesure par conductance	Conductance du liquide	0-3,5 mm	± 5 %	✓ Applicable pour toute topologie de plaque	× Intrusive × Ponctuelle
Mesure par capacitance	Capacitance du liquide	0,4—2,2 mm	± 20 %		
Mesure acoustique	Vitesse du son	1-6,5 mm	± 2,7 %	✓ Non intrusive	× Ponctuelle
Réflexion externe	Réflexion de la lumière	0,3-1,3 mm	± 10 %	✓ Non intrusive	× Pas applicable en cas de support à surface complexe
Absorption de la lumière	Calcul de l'épaisseur du film en appliquant la loi de Beer-Lambert	0,1-0,5 mm	± 1 à 8 %	✓ Haute précision en cas d'un éclairage uniforme	× Pas applicable en cas de support à surface complexe
Réflexion interne	Réflexion et réfraction de la lumière	9-30 µm	± 5 %	✓ Non intrusive ✓ Applicable pour des épaisseurs faibles	× Nécessite l'utilisation d'un support transparent
Méthode d'ombrage	Variation de l'intensité lumineuse	0,4-0,9 mm	± 4 %	✓Non intrusive	
Méthode de l'intensité de fluorescence	Emission de la fluorescence	> 0,05 mm	± 5 %	✓ Non intrusive ✓Simple ✓Applicable pour des grandes et des petites fenêtres de mesure.	× Nécessite un support non réfléchissant.
Méthode de déplacement laser	Mesure du déplacement	0,2 à 2 mm	± 1 %	✓ Non intrusive	× Ponctuelle
Mesure par fibre optique	Mesure de l'intensité lumineuse	> 100 µm	± 10 %	✓Permet d'effectuer des mesures internes dans les colonnes	× Nécessite la modification du support
Absorption par rayons X	Atténuation des radiations	-	± 1 %	✓Permet d'effectuer des mesures internes dans les colonnes	× Largement onéreux × Nécessite des mesures de protection contraignantes

II.2 Mesure de la vitesse à l'interface du film liquide

Le but de cette partie est de présenter l'ensemble des méthodes expérimentales pour la mesure de la vitesse à l'interface d'un fluide s'écoulant en film mince sous l'effet de la force gravitationnelle. Ces mesures peuvent constituer une avancée importante dans le domaine des films ruisselants en permettant de :

- Mieux appréhender les mécanismes des instabilités interfaciales.
- Faciliter le développement et la validation d'un modèle avancé.

Dans le but de déterminer la vitesse d'un objet, la distance et le temps doivent être mesurés : soit la distance parcourue pendant un temps déterminé ou le temps nécessaire pour parcourir une distance. La mesure de la vitesse d'un fluide, que ce soit un liquide ou un gaz, est délicate puisque ces fluides ne contiennent pas d'objet en mouvement qui nous permettent de quantifier directement une vitesse de fluide. Pour cela, plusieurs métrologies optiques ont été développées. Elles s'appuient sur le principe de l'ajout d'un traceur qui suit l'écoulement mais sans le perturber. En mesurant le changement de la position du traceur dans le temps, la vitesse de l'écoulement peut être calculée. D'autres méthodes ont été également développées afin de quantifier la vitesse de l'écoulement, mais sans aucun ajout de particule, en estimant le déplacement de luminosité entre des images successives. Dans ce qui suit, on présente l'ensemble de ces méthodes, ainsi que les avantages et les inconvénients de chacune.

II.2.1 Vélocimétrie laser

La vélocimétrie laser Doppler (LDV) est une technique non intrusive utilisée pour mesurer la vitesse, en particulier des écoulements des fluides. La haute résolution spatiale de la LDV combinée à sa capacité à suivre les fluctuations rapides de la vitesse représentent un outil important pour l'étude de la dynamique de l'écoulement. L'avantage de cette méthode est qu'elle permet de mesurer les vitesses locales et instantanées du fluide en détectant la fréquence de la lumière diffusée par des particules ensemencées dans le fluide lorsqu'elles traversent une frange ou un motif d'interférence. Les principaux composants d'un système optique nécessaire pour l'application de cette méthode sont illustrés sur la **Figure II.9**.

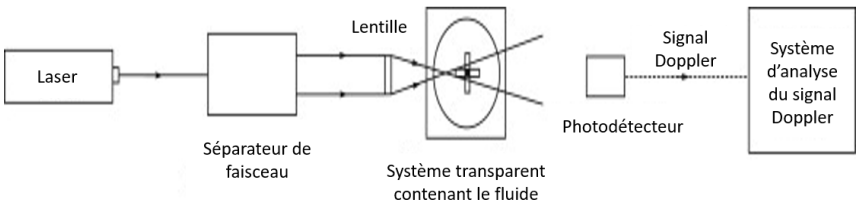


Figure II.9. *Schéma de principe de la méthode vélocimétrie laser (Doran, 2013).*

Le système comprend une source de lumière laser, des dispositifs optiques pour transmettre et collecter la lumière, un photodétecteur et un équipement pour le traitement du signal. Le faisceau du laser est divisé par un séparateur de faisceau en deux faisceaux d'intensité égale qui se croisent pour former un motif de franges dans la région locale du fluide où les mesures de vitesse sont requises. La lumière diffusée par le volume de mesure est collectée et le signal optique est converti en un signal électronique pour être traité. Dans cette méthode, l'utilisation de particules appropriées est nécessaire comme les particules de carbure de silicone, de plastique, de polystyrène ou de matériau à revêtement métallique. Le choix des particules est lié au fluide étudié. Pour permettre la pénétration des signaux lumineux dans le fluide, le système d'écoulement doit être construit dans un matériau transparent tel que le verre, le poly (méthacrylate de méthyle) ou le plastique acrylique.

Cette méthode présente plusieurs inconvénients : premièrement, malgré l'utilisation de particules appropriées selon le fluide d'étude, l'hypothèse que les particules se déplacent à la vitesse du fluide reste toujours un point critique. En plus, les systèmes LDV standards fournissent des informations sur l'écoulement en un seul point. Pour obtenir des données à différents endroits du champ d'écoulement, il faut déplacer l'ensemble du système d'écoulement ou le laser et l'équipement optique de manière à ce que les faisceaux divisés du laser puissent se croiser à différents endroits du fluide. Pour ce faire, l'appareil est monté sur une plateforme équipée d'un mécanisme de déplacement multidimensionnel, qui peut être actionné manuellement ou commandé par ordinateur.

En outre, les mesures LDV présentent plusieurs types d'erreurs. Il est nécessaire de déterminer avec précision la position du volume de mesure en alignant les faisceaux laser par rapport à un point de référence fixe dans le champ d'écoulement. Des erreurs peuvent également survenir en raison du temps fini que mettent les particules à traverser le volume de mesure, et des variations de vitesse à l'intérieur de ce volume. Typiquement, les erreurs dans les vitesses moyennes mesurées par LDV sont de 2 à 5% ; les erreurs dans les vitesses fluctuantes turbulentes sont de l'ordre de 5 à 10% (Doran, 2013).

II.2.2 Vélocimétrie par images de particules (PIV)

Le processus expérimental de la méthode PIV consiste à suivre l'ensemble des étapes suivantes :

- **Ensemencement :** un traceur est ajouté au fluide.
- **Eclairage :** ce traceur est éclairé après ensemencement dans un plan de l'écoulement (PIV2D), au minimum deux fois dans un petit intervalle de temps.
- **Enregistrement :** des images sont enregistrées après éclairage des particules pendant un pas de temps Δt généralement faible.

- **Calibration :** dans le but de déterminer la relation entre le déplacement des particules dans les images enregistrées et le déplacement des particules dans l'écoulement, une calibration spatiale est nécessaire.
- **Evaluation :** le déplacement des particules enregistrées par les images doit être évalué en termes de vitesse.
- **Post-traitement :** afin d'éliminer les mesures erronées et d'obtenir le résultat final de la vitesse, un post-traitement doit être appliqué.

Dans la plupart des applications de cette méthode, des particules solides doivent être ajoutées au fluide, que ce soit un gaz ou un liquide, comme dans le cas de la technique LDV. Pendant la phase de l'éclairage, des images sont enregistrées et le déplacement des particules dans la fenêtre de mesure permet de remonter à la vitesse du fluide. Il est donc supposé que les particules sont en mouvement à une vitesse identique à celle du fluide. Une caméra (CCD ou CMOS) à double obturation et un objectif sont utilisés afin de prendre les images qui seront transmises du capteur et enregistrées dans la mémoire de l'ordinateur. Ces images passeront ensuite par les différentes phases de traitement d'images pour visualiser le champ de vitesse à l'interface gaz-liquide.

Cette méthode présente plusieurs avantages : la PIV est une méthode optique non intrusive. Cette méthode permet en plus d'avoir des informations de vitesse simultanément sur l'ensemble de la fenêtre de mesure alors que la technique LDV permet d'avoir des mesures ponctuelles. L'inconvénient de cette méthode est la nécessité d'utiliser des particules pour la mesure de la vitesse ce qui oblige à vérifier que ces particules vont parfaitement suivre la vitesse du fluide. Pour cela, plus les particules sont petites plus les résultats sont précis. De plus, ces particules peuvent avoir un impact sur les propriétés physico-chimiques du fluide. Bien que cet impact soit considéré faible, il doit être pris en compte en appliquant des mesures de propriétés du fluide avant et après l'ajout de ces particules. La **Figure II.10** illustre le principe de la méthode PIV pour l'enregistrement des composantes de la vitesse dans un écoulement plan.

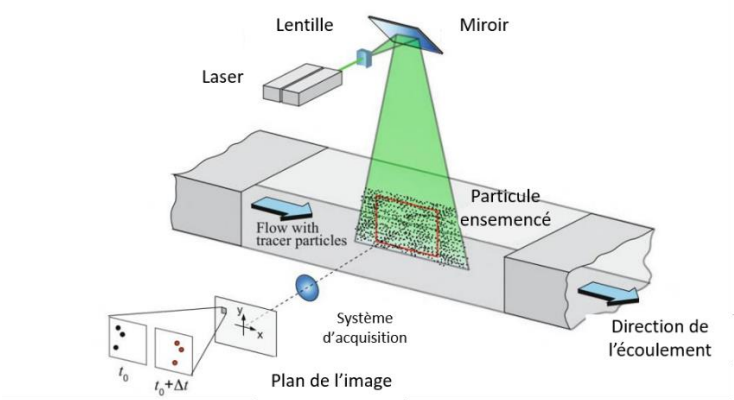


***Figure II.10**. Schéma expérimental de la méthode PIV 2C-2D dans une soufflerie (Markus Raffel el al., 2007).*

La méthode PIV est bien adaptée aux images à concentration de particules élevée. Une comparaison locale de deux images successives prises aux temps t_0 et $t_1 = t_0 + \Delta t$ avec des techniques de corrélation croisée permet d'estimer le déplacement (en pixel) d'un groupe de particules. Ce déplacement correspond au maximum de la fonction de corrélation. Afin d'obtenir les meilleurs résultats lors de l'utilisation de la PIV, la taille de la fenêtre de visualisation doit être suffisamment importante pour qu'un maximum de particules soit inclus dans cette fenêtre. Hu et al. (1998) ont appliqué la méthode PIV et ils ont conclu que l'estimation du champ de vitesses est sensible à la taille de la fenêtre de mesure. Les écoulements turbulents à haut Re induisent des mouvements rapides du fluide, si la fenêtre de mesure est petite les particules existant dans le fluide peuvent disparaitre entre les images successives. On perd alors l'information de déplacement de ces particules. Ainsi, cette méthode est sensible aux écoulements ayant des Reynolds élevées. Une taille de fenêtre réduite est uniquement limitée à la capture de petits déplacements des particules fluides. Une fenêtre de grande taille est quant à elle nécessaire pour capter le mouvement rapide des particules car si les particules ne sont pas captées dans les images successives, la mesure du champ de vitesse sera inexacte. De plus, en augmentant la taille de la fenêtre de mesure, une meilleure précision de la mesure de la vitesse sera obtenue car le nombre de particules captées est plus grand, mais la résolution spatiale du champ de vitesse diminuera.

II.2.3 Vélocimétrie par suivi de particules (PTV)

La méthode PTV est basée sur la même technique que la méthode PIV, la différence étant la densité des particules utilisées. La méthode PTV consiste à suivre les particules individuellement, alors que la méthode PIV est une méthode qui permet d'obtenir la vitesse en se basant sur le mouvement d'un groupe de particules des images. Les figures ci-dessous représentent deux images de fluide ensemencé par des particules pour l'application des deux méthodes PTV (**Figure II.11.a**) et PIV (**Figure II.11.b**) :

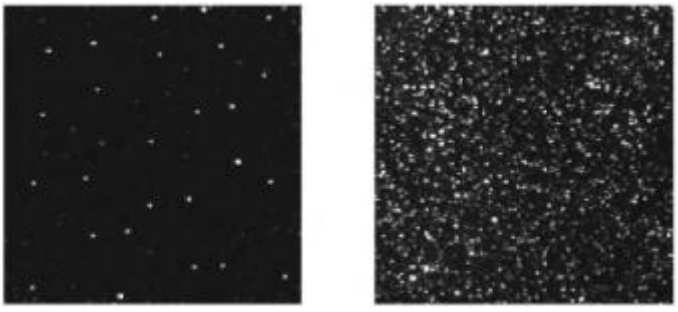


Figure II.11. *Les deux modes d'imagerie de particule : (a) faible densité, (b) densité élevée (Markus Raffel et al., 2007).*

Ces deux méthodes ont été largement appliquées pour la détermination de la vitesse d'écoulement liquide sur différentes formes de plaques. Gerke & Repke (2019) ont appliqué la méthode PIV afin de visualiser les trois composantes de vitesse sur trois différentes morphologies de plaque (plane,

ondulée, complexe) en utilisant un laser 'Litron Lasers Nano T 135-15 PIV' spécifique pour la PIV qui émet un rayon lumineux ayant une longueur d'onde de 532 nm. Dans leur étude, ils ont utilisé deux types de fluide ayant chacun des paramètres physico-chimiques différents (fluide A : eau déminéralisée avec Propan-1,2-diol ayant 28 mPa.s de viscosité, 1040.5 kg/m^3 de masse volumique et 39 mN/m de tension de surface ; Fluide B : eau déminéralisée avec glycérol ayant 8,5 mPa.s de viscosité, 1151,2 kg/m^3 de masse volumique et la tension de surface a été diminuée jusqu'à 26mN/m en ajoutant 5g/L de Marlipal^{TM}). Les particules ajoutées sont en verre et ont une forme sphérique de diamètre 10 µm. Deux configurations d'imagerie ont été appliquées : la première ayant une résolution spatiale de 35 µm et une fenêtre de mesure de 4,5 × 3,5 mm^2 pour visualiser le champ de vitesse au niveau des microstructures. La deuxième configuration d'imagerie présente une fenêtre de mesure plus large 10 × 12 mm^2 et une résolution spatiale de 87 µm. Ils ont obtenu des champs de vitesse qui montrent les recirculations et la variation des composantes de la vitesse au niveau des creux et des crêtes des ondulations.

Charogiannis et al. (2015) ont appliqué la méthode PIV et la méthode PTV afin de visualiser la vitesse locale dans l'épaisseur du film pour des écoulements sur des structures plates et ondulées pour différents Re et Ka. Le laser utilisé dans leur étude est de même type que celui utilisé par Gerke & Repke (2019).

Solomenko (2016) a appliqué la méthode PIV pour mesurer la vitesse de l'écoulement sur une plaque plane avec une résolution temporelle allant de 450 à 1350 µs. La fréquence d'acquisition a été fixée à 15 Hz. Les particules solides utilisées sont du polyéthylène de forme micro-sphérique et de couleur rouge, de dimensions allant de 10 à 45 µm. Les résultats obtenus quantifient un champ de vitesse à l'interface gaz-liquide sur l'ensemble de la fenêtre de mesure allant de 0 à 0,0675 m/s sur plaque plane inclinée de 10˚ en utilisant un fluide visqueux (ν = 53 × 10^{-6} m^2/s). La mesure de la vitesse a aussi été visualisée pour des plaques à surface complexe avec des ondulations. Le but des travaux de Solomenko (2016) était d'identifier la vitesse à la surface libre du liquide. Malgré l'utilisation des particules de type hydrophobe, les images montrent que ces particules ne se situent pas uniquement à l'interface. Ceci nécessite alors de supprimer les particules qui existent dans l'épaisseur du film afin d'identifier uniquement celles qui sont à la surface du liquide. Le deuxième problème identifié lors de l'étude sur plaque à surface complexe est la non-homogénéité des particules dans la fenêtre de mesure, ce qui augmente la complexité de l'analyse de l'image. Ces inconvénients des méthodes PIV et PTV pour l'estimation de la vitesse à l'interface mènent à rechercher d'autres méthodes qui permettent de quantifier la vitesse à la surface libre du liquide sans ajout de particules.

II.2.4 Méthode de flot optique

Le flot optique peut être défini comme l'estimation du mouvement dans une séquence d'images. Les images ci-dessous (**Figure II.12**) représentent une séquence d'images extraite d'un enregistrement par caméra rapide. La différence de temps entre le moment de la prise de la première et la deuxième image est Δt = 8,3 ms. La méthode de flot optique est basée sur le principe de l'analyse de ce mouvement, autrement dit le transport de la luminosité entre deux images ou une séquence d'images, mais sur un faible Δt. Cette luminosité peut être sous forme d'un changement de l'intensité de fluorescence ou même le déplacement de tout autre changement de couleur dans l'image.

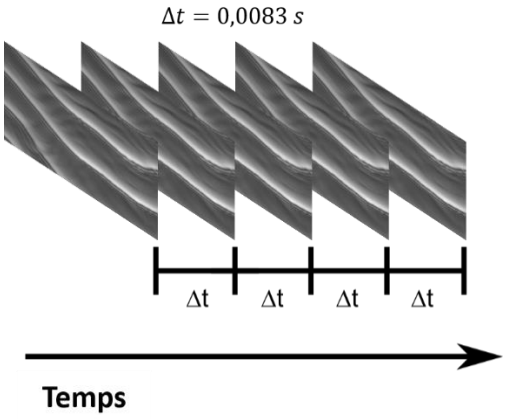


Figure II.12. *Séquence d'images consécutives.*

L'approche usuelle de ce problème est de calculer le champ de vitesse apparent dans les images, également appelé flot optique, en utilisant une équation de transport de la luminosité d'un plan à l'autre de la séquence. Cette équation est communément appelée Contrainte du Flot Optique et a été introduite par Horn & Schunck (1981). Le problème de cette équation est qu'elle est sous dimensionnée : c'est une forme linéaire sur un vecteur à deux composantes. Il faut donc lui adjoindre une seconde équation afin de résoudre le système. Cette équation est basée sur l'hypothèse que la luminosité pour un point (x, y) dans le plan de l'image reste constante entre deux images proches :

$$\frac{dI}{dt} = 0 \qquad \textbf{Eq. II.2}$$

$$I\,(x, y, t) = I(x + dx, y + dy, t + dt) \qquad \textbf{Eq. II.3}$$

En appliquant la règle de dérivation en chaine :

$$\frac{\partial I}{\partial x}\frac{dx}{dt} + \frac{\partial I}{\partial y}\frac{dy}{dt} + \frac{\partial I}{\partial t} = 0 \qquad \textbf{Eq. II.4}$$

$$u = \frac{dx}{dt}\ et\ v = \frac{dy}{dt} \qquad \textbf{Eq. II.5}$$

on remarque que l'équation est une équation linéaire à deux inconnues :

$$I_X u + I_Y v + I_t = 0 \qquad \textit{Eq. II.6}$$

Dans ces équations I représente l'intensité de luminosité, I_x et I_y représentent les dérivées partielles de la luminosité de l'image en un point, x et y sont les coordonnées d'un point dans le plan cartésien de l'image, dx et dy sont les déplacements dans le plan de l'image et t et dt sont le temps et la différence de temps entre deux images. Le problème de cette équation, connue comme l'équation de contrainte de luminosité, est qu'elle représente une équation à deux inconnues (u et v) et que la résolution de cette équation nécessite des hypothèses autres que celle de la constance de luminosité entre deux images. Plusieurs algorithmes ont été appliqués pour obtenir des champs de vitesse bidimensionnels dont : Horn-Schunk HS (Horn & Schunck, 1981), Lucas-Kanade LK (Lucas & Kanade, 1981), Farenback FB (Farnebäck, 2002). Les méthodes LK et HS sont toutes deux basées sur l'hypothèse de la constance de luminosité, comme illustré dans **Eq. II.3**. La différence entre ces deux méthodes est que dans le cas de LK, il se base sur l'hypothèse que le champ de vitesse est constant au voisinage du pixel et que dans ce cas la résolution de **Eq. II.6** est possible (chaque pixel du même voisinage donne accès à une équation avec u et v constants dans toutes les équations et donc le problème est résolu). Dans le cas de HS, la technique se base sur le calcul dans le domaine entier de l'image. Pour résumer le principe de ces 3 méthodes :

- Lucas et Kanade (LK) ont supposé un déplacement faible et constant dans le voisinage local du pixel entre deux images successives, et ont résolu les champs de flot optique par la méthode des moindres carrés linéaires.
- Horn et Schunk (HS) ont calculé des champs de flux denses (quantité d'information élevée) de la vitesse en proposant un calcul global sur l'ensemble de l'image. Un des avantages de cette méthode est la densité élevée des champs de flot optique mais cela donne un résultat assez lisse (global).
- La technique de Farenback (FB) suppose un champ de déplacement variant lentement, ce qui donne un champ de flux optique trop lisse.

Ces méthodes ont été inventées en 1981. Plusieurs chercheurs ont travaillé sur ces méthodes afin d'augmenter la précision, la fiabilité et diminuer le temps nécessaire pour le calcul du flot optique. Après près de 30 ans de recherche dans le domaine du flot optique, ces méthodes ont abouti à un haut niveau de fiabilité et de précision des algorithmes comme le montrent les travaux de Deqing Sun (2008). La plupart des méthodes d'aujourd'hui ressemblent à celle de Horn et Schunk mais avec des modifications aboutissant à des gains de performance.

Le **Tableau II-2** représente un résumé de ces trois méthodes de flot optique :

***Tableau II-2** : Résumé des différentes méthodes de flot optique avec les avantages et les inconvénients.*

Technique	Hypothèses	Avantages	Inconvénients
LK	• Equation de contrainte de flot optique. • Déplacement faible et constant dans un voisinage local du pixel entre deux images. • Méthode des moindres carrés linéaires.	✓Résistance élevée au bruit	× Champs de vitesse non denses
HS	• Equation de contrainte de flot optique. • Contrainte de lissage • Calcul de l'intégrale de l'équation sur l'ensemble des pixels de l'image	✓Champs de vitesse dense ✓Temps de calcul relativement réduit	× Sensible au bruit
FB	• Faible déplacement dans un voisinage local du pixel entre deux images.	✓Précision relativement élevée, champs de vitesse dense	× Champs d'écoulement trop lisse

Dans le cas de l'étude de la vitesse à l'interface gaz-liquide de l'écoulement sur des plaques à surface plane et complexe, la mesure de la vitesse selon la méthode du flot optique est applicable en utilisant une méthode développée par Deqing Sun (2008). L'algorithme utilisé dans ces travaux est basé sur la résolution du problème de flot optique en minimisant une fonction de coût (**Eq. II.7**) constituée d'un terme d'attache aux données $E_{données}(u,v)$ et d'un terme de régularisation $\lambda E_{régularisation}(u,v)$.

$$E(u,v) = E_{données}(u,v) + \lambda E_{régularisation}(u,v) \qquad \textit{Eq. II.7}$$

Ses travaux ont comme but d'améliorer la méthode de HS en utilisant le filtrage médian (le terme de régularisation). Le filtre médian représente un filtre numérique non linéaire qui permet de réduire la propagation d'erreur lors des étapes itératives du calcul du flot optique. L'application de ce filtre donne une meilleure précision. Dans le cas de notre étude, l'ajout de la fluorescéine et l'excitation de cette molécule délivrent un signal de fluorescence. Les variations de hauteur de film liquide génèrent un contraste de ce signal de fluorescence suffisant pour matérialiser une texture de nos images, qui va servir d'accroche pour le calcul de flot optique.

II.2.5 Discussion

Dans la partie précédente, plusieurs méthodes non intrusives applicables à la mesure de la vitesse à l'interface de la phase liquide ont été expliquées. La précision de ces méthodes est liée à la qualité des images ainsi qu'à la précision de l'algorithme de l'estimation du champ de vitesse. Les méthodes PIV et PTV sont des méthodes plus adaptées aux mesures de vitesse dans le film liquide et pas uniquement à l'interface gaz-liquide. Ceci peut être lié à la présence des particules dans l'épaisseur du fluide ce qui nécessite un filtrage complexe pour identifier celles uniquement présentes à la surface. Un deuxième

inconvénient de ces méthodes est la non-homogénéité des particules dans la fenêtre de mesure car on suppose que les particules circulent à la même vitesse que le fluide ensemencé. La méthode de flot optique est intéressante dans notre cas vu que cette méthode est appliquée sans aucun impact sur les propriétés physico-chimiques du liquide (pas d'ensemencement de particules). En outre les mêmes images utilisées pour la mesure de l'épaisseur de film liquide par fluorescence peuvent être utilisées pour la mesure de la vitesse. Ainsi un couplage de méthodes peut être exploité aisément.

II.3 Transfert de matière gaz-liquide

Le transfert de matière gaz-liquide à l'échelle locale est un sujet d'intérêt dans de nombreuses applications industrielles comme dans les bioréacteurs, colonnes de distillation et les procédés de traitement des eaux usées. Un manque de connaissances persiste dans la compréhension des phénomènes de transfert notamment à proximité de l'interface liquide. Plusieurs techniques optiques ont donc été développées telles que la colorimétrie, la fluorescence induite par laser et la mesure de temps de vie de fluorescence. Elles ont été utilisées grâce à leurs avantages d'un point de vue de la résolution spatiale, de la rapidité de la réponse et de leur caractère non intrusif. Dans cette partie, les principes de fonctionnement des différentes techniques de mesure sont présentés avec leurs avantages et inconvénients.

II.3.1 Techniques basées sur la fluorescence

La méthode de fluorescence induite par un laser (LIF-O_2) est similaire à celle de l'intensité de fluorescence utilisée pour la mesure de l'épaisseur du film liquide. La différence réside dans le type du fluorophore ajouté au liquide et le type d'éclairage. Dans le cas de la mesure de l'épaisseur du film, le colorant utilisé doit être insensible à l'oxygène comme la fluorescéine. Dans le cas de la mesure du transfert de matière, la fluorescence du fluorophore doit être sensible à la concentration de l'oxygène dissous dans le liquide, ce qui est le cas pour le complexe de ruthénium ou l'acide pyrène butyrique (PBA). Avec ces substances, le phénomène de quenching par les molécules d'oxygène atténue la quantité d'énergie lumineuse de fluorescence. La diminution de la luminosité de fluorescence est directement proportionnelle au nombre de molécules d'oxygène dissous dans le liquide. Quand l'oxygène est absent, la luminosité de la fluorescence est maximale, ce qui amène à une mesure maximale de la fluorescence. Lorsque l'oxygène commence à se diffuser dans le liquide, la fluorescence est inhibée et donc il y a diminution de la luminosité. La concentration de l'oxygène peut donc être déterminée par le niveau de l'intensité enregistré par la caméra. La conversion en concentration d'oxygène est basée sur l'équation de Stern-Volmer :

$$\frac{I}{I_0} = \frac{\tau}{\tau_0} = \frac{1}{1 + K \times C} \qquad \textit{Eq. II.8}$$

Dans cette équation, $K\ (L/mg)$ représente la constante de Stern-Volmer, $C\ (mg/L)$ la concentration de l'oxygène, I et I_0 les intensités de fluorescence en présence et en absence de l'oxygène, respectivement de même pour τ et τ_0 en nanoseconde (ns) qui représentent le temps de vie de fluorescence dans les mêmes conditions. L'intensité de fluorescence enregistrée par la caméra, caractérisée par un niveau de gris, est inversement proportionnelle à la concentration en oxygène dans le liquide. Une courbe de calibration est nécessaire pour effectuer le lien entre l'intensité de fluorescence et la concentration en oxygène. Cette courbe peut être obtenue en mesurant l'intensité de fluorescence dans une solution à concentration en oxygène connue (grâce à des sondes de mesure d'oxygène dissous). La méthode de fluorescence induite par un laser peut être appliquée de deux façons :

- La première méthode expliquée précédemment est basée sur la mesure de l'intensité de fluorescence induite par le rayonnement continu laser.
- La deuxième méthode est basée sur la mesure du temps de vie de fluorescence en utilisant une lampe qui fonctionne en mode modulé.

La première méthode présente un inconvénient majeur par rapport à notre étude : l'intensité est liée à l'absorbance qui elle-même est liée à l'épaisseur du film liquide (loi de Beer-Lambert) :

$$A = \in \delta\, c \qquad \textit{Eq. II.9}$$

Dans cette équation, A représenté l'absorbance, $\in$ l'absorptivité du fluide qui correspond à sa capacité à absorber la lumière, δ l'épaisseur du film et c la concentration molaire de fluorophore. Pour avoir des résultats fiables en transfert de matière, il est nécessaire d'avoir une cartographie précise de l'épaisseur du film liquide.

Pour la deuxième méthode, en présence d'oxygène, l'indicateur ajouté au liquide est excité grâce à une source de lumière et peut transmettre son énergie aux molécules d'oxygène par collision. Il en découle que l'intensité ainsi que la durée de vie de la fluorescence diminuent lorsque la concentration d'oxygène augmente. Cette méthode nécessite l'utilisation d'une source de lumière en mode modulé et d'un fluorophore dont l'intensité de fluorescence est constante pour une intensité lumineuse constante et une concentration en oxygène donnée. Si on coupe la source lumineuse, l'intensité de fluorescence décroit selon un temps caractéristique donné par la durée de vie de cette fluorescence. Cette durée de vie est fonction de la concentration en oxygène. Avec une source lumineuse d'intensité modulée on peut ainsi créer un signal d'excitation de fluorescence modulé à la même fréquence mais déphasé par rapport à l'émission de la lumière incidente (**Figure II.13**).

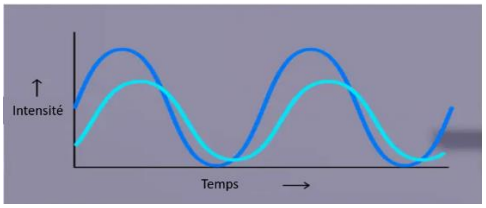


Figure II.13. *Courbe d'excitation* *Courbe d'émission*

Le lien entre le temps de vie de fluorescence et ce déphasage est décrit par l'équation ci-dessous :

$$\tau = \frac{\tan \varphi}{2\,\pi\, f_{mod}} \qquad \textit{Eq. II.10}$$

Dans cette équation, φ représente le déphasage entre les deux ondes et f_{mod} la fréquence de modulation de la lumière. Une fois le temps de vie calculé, la concentration correspondante peut être estimée en utilisant l'équation de Stern-Volmer (**Eq. II.8**).

Vaughan & Weber (1970) ont été les premiers à visualiser un champ de concentrations en oxygène en utilisant une propriété de l'acide pyrène butyrique (PBA). Plusieurs chercheurs ont utilisé cette méthode pour des interfaces planes (Münsterer & Jähne, 1998) et inclinées (Woodrow & Duke, 2001). La méthode de temps de vie de fluorescence a aussi été appliquée par Moßhammer et al. (2019) pour la mesure de la concentration de l'oxygène dissous autour de la rhizosphère d'une plante *Littorella unifiora* avec une haute résolution spatiale (< 50-100 µm) et une résolution temporelle de l'ordre de 10 s. Dans le cas de notre étude, cette méthode est intéressante puisqu'elle permet d'étudier le transfert de matière indépendamment de l'épaisseur du film liquide.

L'avantage de la deuxième méthode par rapport à la première est que le temps de vie ne dépend pas de l'épaisseur du film ce qui n'est pas le cas pour l'intensité de fluorescence, qui dépend à la fois de l'épaisseur du film et de la concentration d'oxygène dissous.

II.3.2 Colorimétrie

La technique de colorimétrie est basée sur des réactions d'oxydation et de réduction entre une espèce absorbée et un colorant dissous par lesquelles la concentration de l'espèce cible peut être déduite grâce au changement de couleur du colorant. Ces colorants sont utilisés pour étudier le transfert de masse et les champs de concentration. Les indicateurs colorimétriques utilisés présentent diverses formes réduites sensibles à l'oxygène. Il existe un grand nombre de composés chimiques organiques qui présentent une couleur intense à l'état oxydé ou réduit, et incolore ou de couleur différente à l'état conjugué. Par exemple le bleu de méthylène est bleu à l'état oxydé mais incolore à l'état réduit.

Dietrich et al. (2013) ont utilisé la résazurine comme indicateur colorimétrique car ce composé présente diverses formes réduites sensibles à l'oxygène, dont les couleurs vont de l'incolore (sans oxygène) au rose (lorsque l'oxygène est présent) (**Figure II.14**). Ce composé a été utilisé pour visualiser

le transfert de matière gaz-liquide autour des bulles en mouvement dans un canal millimétrique carré droit. Quand la résazurine est dissoute dans la solution liquide (bleu et non fluorescent) elle est réduite en résorufine (rose et très fluorescent), la réduction étant catalysée par l'hydroxyde de sodium et le glucose. Ensuite, une réduction-oxydation réversible se produit entre la résorufine et la dihydrorésorufine (incolore et non fluorescente). Comme la réaction d'oxydation est quasi instantanée et la réaction de réduction est lente (quelques minutes), il est possible de visualiser le champ coloré rose.

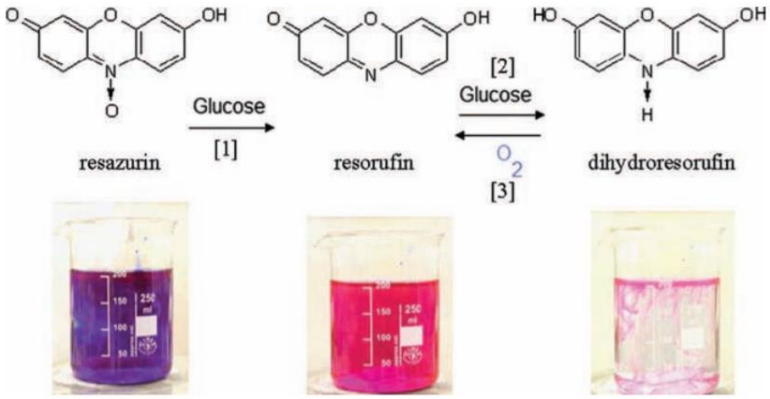


Figure II.14. *Réduction de la résazurine en résorufine par le glucose et l'hydroxyde de sodium (étape 1) ; Réduction de la résorufine en dihydrorésorufine en présence de glucose (étape 2) ; Réoxydation de la dihydrorésorufine en résorufine en présence d'oxygène (étape3) (Xu et al., 2019).*

La réaction d'oxydation est décrite ci-dessous :

$$O_2 + 2 \times dihydroresorufine \rightarrow 2 \times resorufine + 2 \times H_2O \qquad \textbf{Eq. II.11}$$

Le nombre de moles d'oxygène dissous peut être déduit à partir du nombre de moles de resazurine :

$$n_{O_2\ transféré} = n_{O_2\ réagi} = \frac{n_{resazurine}}{2} \qquad \textbf{Eq. II.12}$$

Cette méthode est une méthode optique qui nécessite d'analyser des images en niveaux de gris. Ces niveaux de gris correspondent à la couleur du colorant qui varie avec la concentration d'oxygène dissous. Une courbe de calibration est nécessaire afin de connaitre la variation de l'intensité du colorant (en niveau de gris de l'image) en fonction de la concentration d'oxygène dissous. Cette courbe de calibration permet ensuite de convertir le niveau de gris en concentration d'oxygène.

Cette méthode a été aussi appliquée par Xu et al. (2019) pour visualiser le transfert autour d'une bulle qui s'élève dans l'eau. Le but de leur travail était de comparer trois méthodes de visualisation de transfert : deux méthodes basées sur la fluorescence induite par laser et la troisième par colorimétrie. La méthode colorimétrique s'avère moins précise puisqu'elle ne permet pas de visualiser uniquement le transfert dans la section cible c'est-à-dire à l'interface.

Un autre inconvénient de cette méthode dans le cas de l'étude du film liquide est que l'intensité de la couleur dépend aussi de l'épaisseur du film liquide. Ainsi il est nécessaire d'avoir une cartographie de l'épaisseur du film liquide en même temps que la mesure de l'intensité de la couleur, comme dans le cas de la méthode d'inhibition de la fluorescence induite par un laser.

II.3.3 Discussion

Trois méthodes ont été décrites et détaillées pour la mesure du transfert de matière gaz-liquide, en précisant les inconvénients et les avantages de chaque méthode. Les deux méthodes basées sur l'intensité de fluorescence et la colorimétrie ne seront pas utilisées pour la mesure du transfert de matière puisque ces méthodes nécessitent de mesurer simultanément l'épaisseur du film liquide et l'intensité de fluorescence ou de la luminosité de l'indicateur de couleur utilisé. La méthode de mesure de temps de vie de fluorescence présente quant à elle l'avantage d'être indépendante de l'épaisseur du film liquide et de dépendre uniquement de la concentration en oxygène dissous dans le liquide.

II.4 Conclusion

Le but de cette thèse est de mesurer l'épaisseur du film liquide, la vitesse à l'interface du liquide et le transfert de matière en appliquant des méthodes non intrusives, qui présentent un minimum d'impact sur l'écoulement du fluide et sur les propriétés physico-chimiques de ce dernier. Dans ce chapitre nous avons revu les bases des techniques existantes pour identifier les plus pertinentes pour notre étude.

Pour la mesure de l'épaisseur du film liquide et de la vitesse à l'interface, la méthode d'acquisition d'images choisie est basée sur le même principe qui est l'intensité de fluorescence. Ceci permet de mesurer deux paramètres en appliquant un seul et même dispositif d'acquisition et en analysant la même séquence d'images. Le même niveau de gris permet de remonter à l'épaisseur du film liquide et à la vitesse à l'interface. Ce couplage facilite l'ensemble de la procédure de mesure tout en assurant des mesures fiables et correctes.

Pour la mesure de l'épaisseur et de la vitesse, les propriétés optiques de l'indicateur coloré utilisé sont indépendantes de la concentration d'oxygène dissous, ce qui est le cas pour la fluorescéine. Dans le cas de la mesure de transfert de matière par la méthode de temps de vie de fluorescence, un fluorophore sensible à la teneur en oxygène du liquide est utilisé, spécifiquement le complexe de ruthénium. Un éclairage en mode modulé est nécessaire, contrairement à un éclairage continu pour la mesure de l'épaisseur et de la vitesse. Cette mesure de transfert de matière ne s'effectue pas simultanément avec la mesure de l'épaisseur et de la vitesse, puisqu'il est nécessaire de changer le fluide pour remplacer la fluorescéine par le fluorophore dont le temps de vie de fluorescence est

sensible à la teneur en oxygène dans le film, avant de reprendre l'expérimentation dans les mêmes conditions opératoires. La méthode de mesure de transfert sera comparée à des mesures globales (entrée-sortie) en utilisant des sondes d'oxygène. La mise en œuvre de ces méthodes dans notre dispositif expérimental fait l'objet du prochain chapitre.

Chapitre III: Dispositif expérimental et application des techniques de mesure

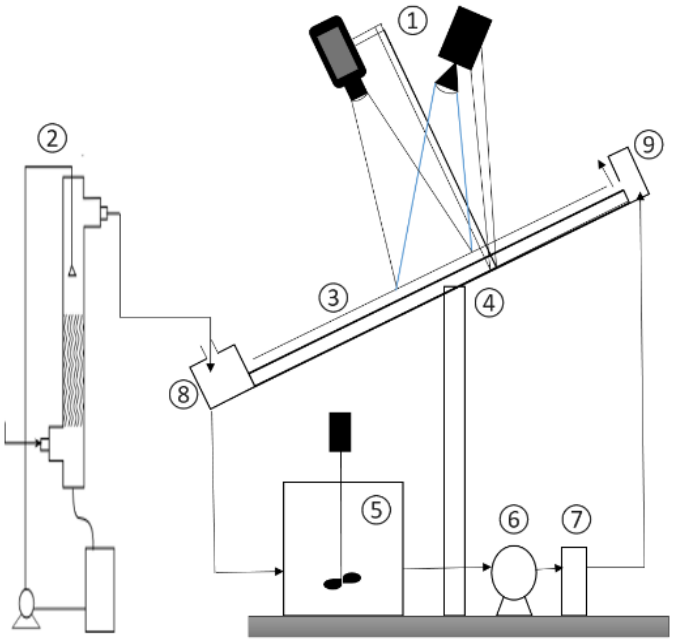
Dans ce chapitre, le dispositif expérimental utilisé pour étudier les écoulements en film mince est présenté, ainsi que les différentes géométries de plaque utilisées. Dans un second temps, les propriétés physico-chimiques des fluides et les mesures associées sont détaillées. Puis, les conditions expérimentales ainsi que les limitations sont décrites pour chaque plaque. Pour chaque méthode de mesure, la mise en œuvre, les corrections et les calibrations sont ensuite présentées. Enfin, le dernier paragraphe est dédié à la procédure de traitement des résultats et leur analyse.

III.1 Mise en œuvre de l'écoulement en film mince

Le dispositif expérimental a été conçu durant la thèse de Vitry (2011) de façon à créer un écoulement en film mince sous l'effet gravitationnel. La flexibilité du montage existant permet de l'adapter aux besoins spécifiques du travail présent pour quantifier l'épaisseur du film, la vitesse à l'interface et le transfert de matière sur les plaques. Plusieurs géométries de plaque sont utilisées ici afin d'étudier leur impact sur l'hydrodynamique et le transfert de matière. La conception des modifications du dispositif expérimental doit permettre aussi de confiner un débit gazeux à contre-courant afin de se rapprocher des conditions opératoires dans les colonnes à garnissage structuré.

III.1.1 Conception du pilote

Le dispositif expérimental (**Figure III.1**) fonctionne en boucle fermée, le liquide est stocké dans un réservoir opaque (5) pour éviter l'excitation des molécules de fluorescéine dans le réservoir et limiter l'excitation au niveau de la plaque d'étude. Le dispositif expérimental est positionné dans une enceinte qui l'isole de l'environnement lumineux du laboratoire. Ainsi, la seule source de lumière est la lampe utilisée. Le liquide est envoyé grâce à une pompe à engrenage Verder VG 200.8 à travers un filtre (7) qui permet d'éliminer les particules ayant une taille supérieure à 20 µm et réduire les fluctuations de débit. Le débit liquide est réglé par un régulateur de débit et mesuré à l'aide d'un débitmètre Macnaught M2 qui permet d'avoir une précision de mesure de débit de ± 1 % pour une gamme d'écoulement allant de 25 à 200 L/h.



①: Système optique (caméra-éclairage)

②: Colonne d'humidification

③: Plaque d'étude et vitre en verre Borofloat®

④: Support des plaques

⑤: Réservoir liquide avec agitateur

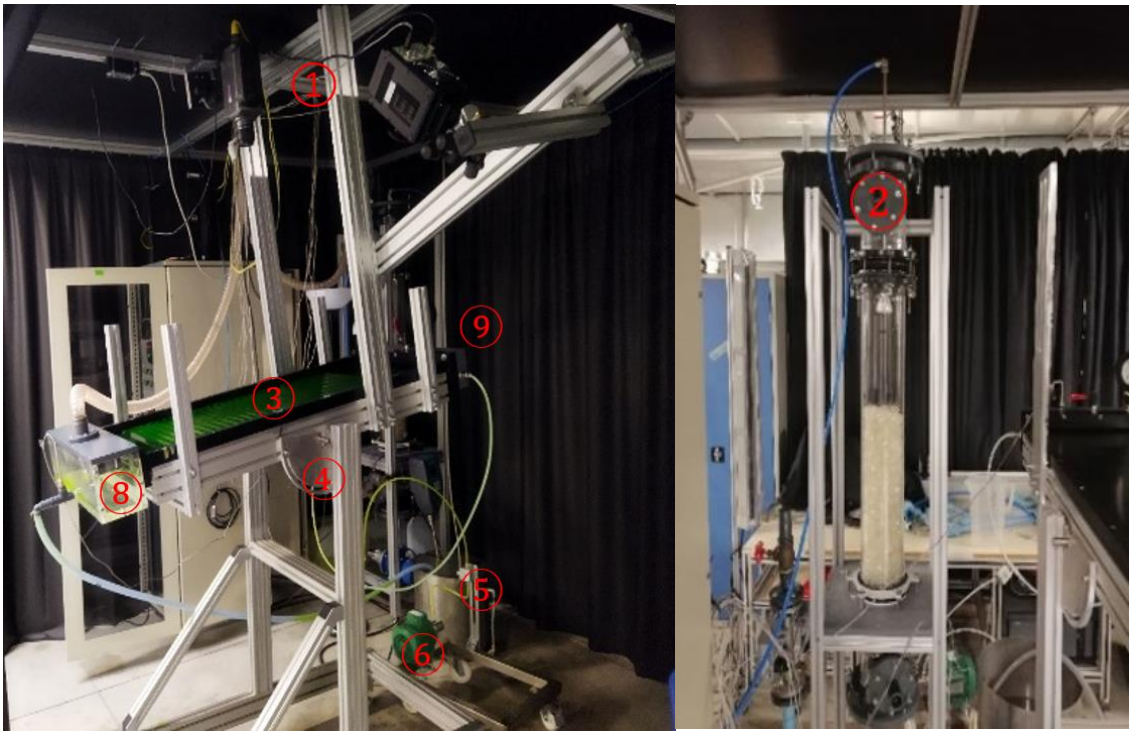
⑥: pompe à engrenage Verder

⑦: Filtre

⑧: Entrée gaz – Sortie liquide

⑨: Sortie gaz – Entrée liquide

(a)



(b)

Figure III.1. *(a) : Schéma du dispositif expérimental (b) : Images réelles du dispositif.*

Le liquide arrive dans la boîte d'alimentation (9) en tête de plaque. La sortie de cette boîte d'alimentation est composée de deux barres parallèles dont l'espacement peut être réglé de sorte à étaler le liquide sur toute la largeur de la plaque. Le liquide est collecté en sortie grâce à une boîte de récupération (8) puis passe par un tuyau de retour vers le réservoir. Les plaques d'étude sont supportées par une plaque en aluminium dont l'épaisseur est de 10 mm ce qui assure la meilleure rigidité possible contre toute déformation. L'ensemble plaque d'étude et support est facilement

modifiable et est monté sur un châssis en aluminium. Ce châssis permet d'élaborer des expériences à différentes inclinaisons allant de 0° (horizontale) à 90° (verticale). Au-dessus de la plaque, une vitre en verre Borofloat® 33 ayant une longueur de 1140 mm, une largeur de 500 mm et une épaisseur de 9 mm est posée par l'intermédiaire de quatre supports en aluminium. Le verre Borofloat® 33 présente plusieurs avantages en termes de qualité optique (transmittance élevée) et de planéité. Cette plaque a pour rôle de confiner l'écoulement gaz. La section de passage entre la plaque plane et la plaque en verre est de 12 mm. Le gaz est de l'air sec qui provient du compresseur du laboratoire. Son débit est mesuré à l'aide d'un débitmètre Brooks MT3809 ayant une précision de ± 1,6 % sur une gamme d'écoulement entre 20 et 150 m^3/h. Les écoulements en film mince ont une épaisseur très faible (de quelques centaines de microns à quelques millimètres). Afin de ne pas évaporer le fluide d'étude, le gaz traverse une colonne d'humidification (2) de diamètre 150 mm contenant un lit de hauteur 0,5 m de garnissage en vrac de type anneaux de Raschig. L'air ainsi saturé en eau arrive ensuite à la boîte de distribution du gaz (8) et remonte le long de la plaque avant de ressortir en (9). Ce pilote est équipé de sondes PT100 aux points d'entrée et de sortie du gaz et du liquide. Ces mesures de températures permettent de calculer et de vérifier les paramètres physico-chimiques du film liquide. Le système optique (1) est composé d'une caméra et d'une lampe dont les caractéristiques sont détaillées plus tard.

III.1.2 Plaques d'étude

Plusieurs géométries de plaque sont utilisées afin de pouvoir comparer les différentes structures de l'écoulement. Les plaques étudiées représentent des géométries simplifiées en comparaison de la structure complexe des garnissages structurés, ce qui revient à négliger certains phénomènes. Plus précisément, les plaques étudiées ne comportent ni les microstructures qui améliorent l'étalement du liquide, ni les perforations qui servent à l'équilibrage de pression entre les plaques dans une colonne industrielle. Le choix du matériau et de la couleur des plaques permet de minimiser les bruits optiques qui peuvent être enregistrés par le capteur de la caméra. L'aluminium est choisi pour ses côtés résistant, peu onéreux et facilement usinable. Cependant, l'aluminium dans son état brut est un matériau brillant. L'application de méthodes optiques sur un support brillant induit des réflexions de lumière. Les plaques sont donc anodisées afin de les noircir pour éviter tout type de réflexion de lumière. Ce traitement de surface par oxydation anodique permet de noircir les plaques en ajoutant une couche mince de 5 à 10 µm d'oxyde d'aluminium noir mat.

Trois plaques sont étudiées sur ce dispositif expérimental. La géométrie des plaques est choisie de façon à débuter par une configuration classique (plaque plane) et ensuite complexifier la géométrie afin de se rapprocher le plus possible d'une tôle de Mellapak™ 250Y (Sulzer Chemtech). Cette dernière

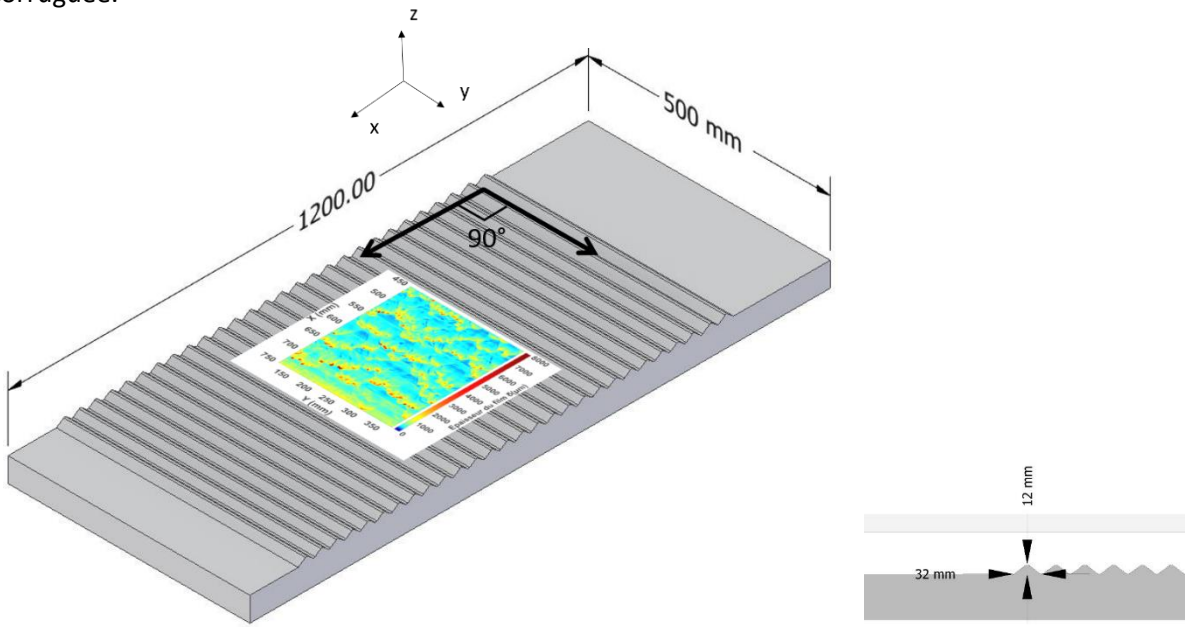
est un des garnissages structurés de référence pour la distillation, et a fait l'objet de nombreuses études.

1. Plaque plane

La première plaque consiste en une plaque plane de longueur 1200 mm et de largeur 500 mm. Ces dimensions permettent d'effectuer les mesures hydrodynamiques du film liquide sur une large fenêtre de mesure sans aucun impact des effets de bord.

2. Plaque corruguée transversale

La deuxième géométrie choisie présente des corrugations transversales (**Figure III.2.a**) ayant une amplitude de 12 mm et une base de corrugation de 32 mm (**Figure III.2.b**). Ces corrugations sont sinusoïdales et alignées perpendiculairement à l'écoulement (angle de 90° avec l'axe des abscisses x (**Figure III.2.a**)). Les dimensions de cette plaque sont similaires à la plaque plane (1200 mm de longueur et 500 mm de largeur) et la position de la fenêtre de mesure est la même pour la plaque plane et la plaque corruguée transversale. La **Figure III.2.a** illustre la position de la fenêtre de mesure sur la plaque corruguée transversale. Cette illustration ne reflète pas la vraie dimension de la fenêtre de mesure (300×250 mm^2) par rapport à la plaque mais cette illustration facilite la compréhension de la position de la fenêtre de mesure par rapport aux corrugations. Le liquide sortant de la boîte d'alimentation s'écoule au préalable sur une zone plane d'une longueur de 200 mm avant d'atteindre la zone corruguée ce qui permet d'obtenir un étalement du film liquide sur toute la surface de la zone corruguée.



(a) *(b)*

Figure III.2. *Géométrie de le plaque corruguée transversale.*

3. Plaque corruguée type Mellapak^{TM} 250Y

La troisième plaque étudiée est de longueur 650 mm et de largeur 450 mm (**Figure III.3**) et présente une géométrie qui ressemble à la géométrie des tôles utilisées dans l'assemblage des garnissages Mellapak^{TM} 250Y mais avec une surface lisse sans perforations. Cette plaque va être nommée plaque Mellapak^{TM} 250Y dans la suite de ce manuscrit. Les limites de l'outil de fabrication exploité ne permettent pas de reproduire exactement les dimensions d'une tôle de garnissage Mellapak^{TM} 250Y (corrugations d'amplitude 11 mm, de base 32 mm et d'angle à la verticale de 45° (Wang et al., 2014)), mais de s'en rapprocher suffisamment. La géométrie de la plaque réalisée présente une amplitude de 11 mm et une base de corrugation de 25 mm avec un angle de corrugation de 45° avec l'axe des abscisses x (**Figure III.3**). La plaque fabriquée ne comporte pas de microstructures ni de perforations et les expériences sont effectuées sur une seule plaque et non pas un assemblage comme dans le cas réel des garnissages structurés industriels. Ces simplifications impliquent que l'on néglige certains phénomènes tels que l'interaction et la redistribution de liquide entre les différentes plaques. La fenêtre de mesure sur cette plaque est illustrée sur la **Figure III.5**. Cette illustration ne reflète pas la vraie dimension de la fenêtre de mesure (300×250 mm^2) par rapport à la plaque mais facilite la compréhension de la position de la fenêtre de mesure par rapport aux corrugations.

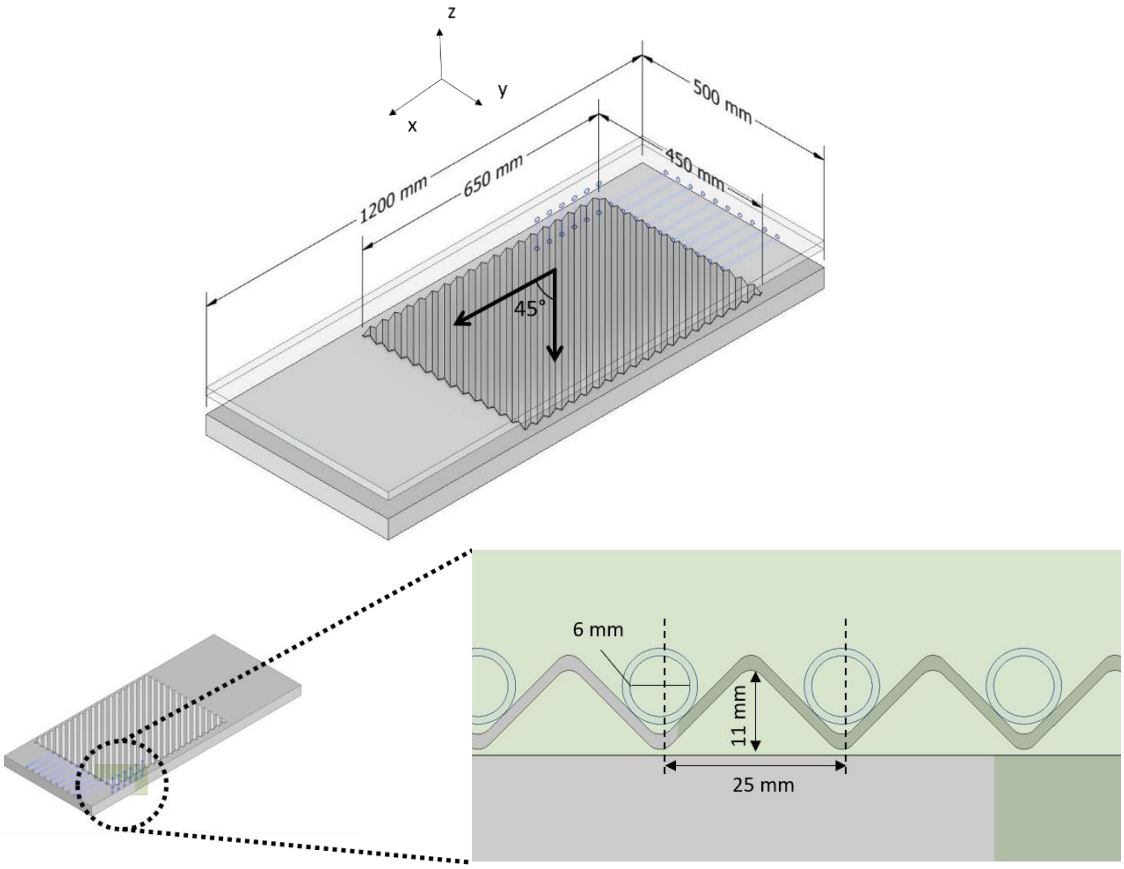


Figure III.3. *Géométrie de la plaque corruguée type Mellapak^{TM} 250Y.*

III.1.3 Systèmes d'injection liquide

Débordement liquide

Pour la plaque plane et la plaque corruguée transversale, l'alimentation liquide est basée sur un système de débordement. Le liquide arrive par l'intermédiaire de deux tubes d'alimentation et remplit la boîte d'alimentation (**Figure III.4**) avant de sortir et ruisseler sur la plaque par effet de débordement. Dans cette boîte d'alimentation, une mousse structurée de polyuréthane est installée et permet d'éviter que le liquide suit des chemins préférentiels. Ces chemins impliquent une distribution non homogène du film liquide sur la largeur de la plaque et des zones sèches. La sortie de cette boîte d'alimentation est composée d'une fente de deux barres parallèles dont l'espacement peut être réglé. Le réglage permet d'étaler le film liquide et avoir un débit liquide identique sur toute la largeur de la plaque.

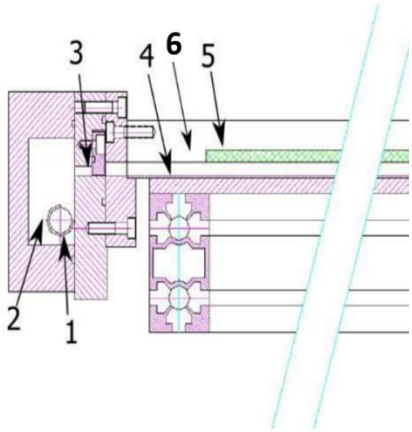
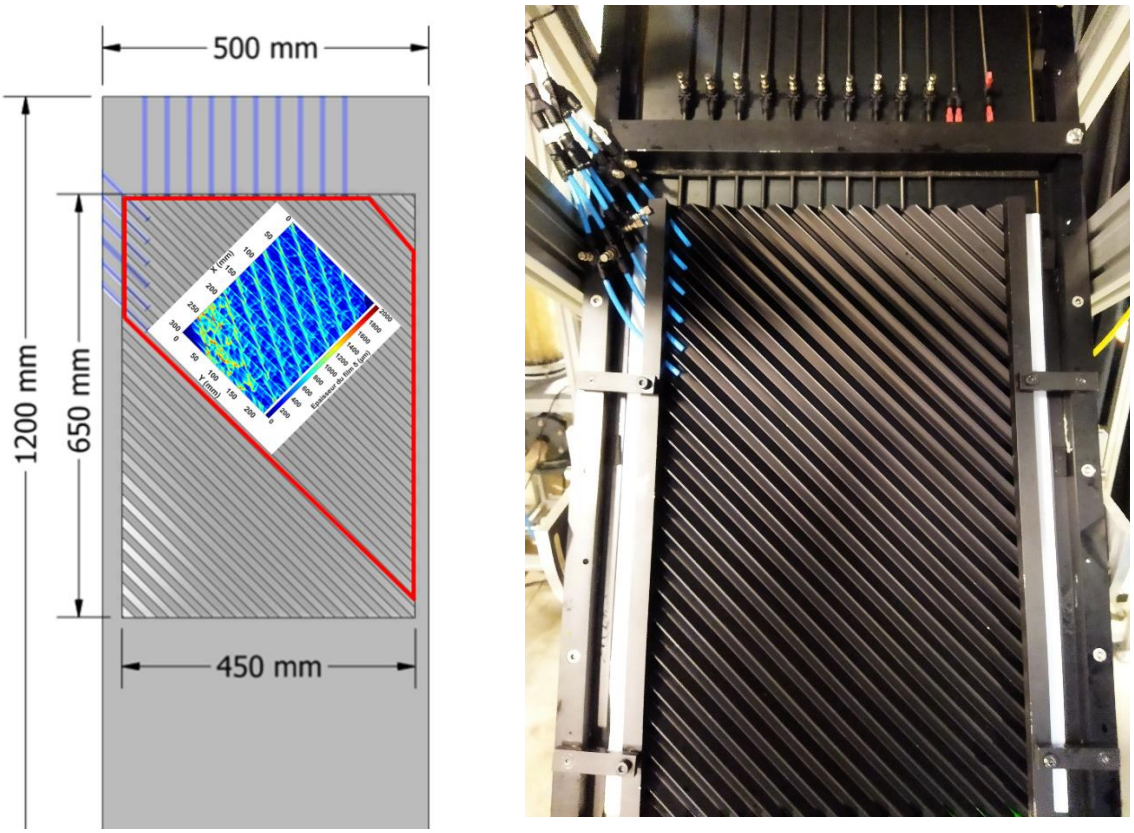


Figure III.4. *Vue détaillée de profil de l'arrivée liquide et gaz ; 1 : arrivée du liquide ; 2 : réservoir contenant la mousse structurée ; 3 : fente réglable ; 4 : plaque support liquide ; 5 : plaque de verre ; 6 : sortie du gaz* (Vitry, 2011).

Injection par tube

Pour la plaque corruguée type Mellapak^{TM} 250Y, afin de se rapprocher des conditions opératoires réelles dans les colonnes à garnissage structuré, la boîte d'alimentation liquide est remplacée par un nouveau système d'injection. Ce système est composé de 16 tubes d'alimentation liquide ayant un diamètre intérieur de 6 mm (**Figure III.5**). Ces 16 tubes alimentent chaque creux de l'ondulation de la plaque, 10 verticales et 6 par le côté avec un angle de 45° (**Figures III.5.a** et **III.5.b**). Cette configuration permet d'obtenir un étalement du liquide sur une large surface de la plaque d'étude (**Figure III.5.a - zone rouge)** et d'étudier l'impact de différents angles d'injection liquide sur la structure de l'écoulement. Sur chaque tube, une vanne est installée afin d'avoir un débit liquide identique en sortie de chaque tube.



(a) *(b)*

Figure III.5. *Système d'injection par tube sur la plaque Mellapak^{TM} 250Y.*

III.2 Propriétés physico-chimiques des fluides d'étude

L'objectif est d'étudier l'impact des propriétés physico-chimiques (viscosité μ, masse volumique ρ, tension de surface σ) sur l'hydrodynamique et le transfert de matière d'un film mince liquide. Les propriétés des fluides exploités sont présentées dans le **Tableau III-1**. La phase liquide est une solution aqueuse contenant un fluorophore requis pour la méthode optique de la mesure de l'épaisseur de film. Un agitateur électrique est fixé au niveau du réservoir liquide (**Figure III.1 – partie 5**) afin de dissoudre ce fluorophore dans la solution. Cet agitateur est utilisé en continu durant toute la durée des expériences afin d'assurer l'homogénéité dans le réservoir liquide. Le choix des mélanges préparés permet de faire varier les propriétés physico-chimiques dans les gammes rencontrées dans les applications industrielles. Les fluides sont à base d'eau et de fluorescéine dissoute. L'éthanol et le glycérol sont ajoutés pour faire varier la viscosité et la tension de surface. Deux solutions à base d'eau et d'éthanol (W-E1 : σ = 35 mN/m ; W-E2 : σ = 50 mN/m) sont préparées et correspondent aux fluides à faible tension de surface. Trois solutions à base d'eau et de glycérol (W-G1 : μ = 5 mPa.s, W-G2 : μ = 10 mPa.s et W-G3 : μ = 15 mPa.s) correspondent aux fluides visqueux. Les paramètres physico-chimiques des mélanges sont calculés en se basant sur des modèles de la littérature (Song, 2017) et

ont été vérifiés expérimentalement avant et après chaque expérience au sein du laboratoire de Service Analyse et Procédés (SAP) du LGC.

***Tableau III-1** : Propriétés physico-chimiques des mélanges utilisés mesurées à T = 21°C et pression atmosphérique P = 1 atm.*

Fluides d'étude	Viscosité	Ethanol/Glycérol Pourcentage volumique	Tension de surface	Masse volumique
	± 0,5 mPa.s		± 2 mN/m	± 10 kg/m^3
Eau - Ethanol 1 (W-E1)	2.2	34	35	954
Eau - Ethanol 2 (W-E2)	1.3	11	50	973
Eau - glycérol 1 (W-G1)	5	41	68	1117
Eau - glycérol 2 (W-G2)	10.2	53	67	1147
Eau - glycérol 3 (W-G3)	15.2	60	67	1165

La température du fluide est maintenue à 21°C ±0,5°C et est vérifiée à l'entrée et à la sortie du dispositif expérimental durant les expérimentations en utilisant les sondes PT 100. La tension de surface est mesurée par la méthode de la goutte pendante en utilisant un tensiomètre Krüss modèle DSA100. Cette méthode est basée sur l'analyse de la forme de la goutte en contact avec l'air. La mesure de la viscosité est effectuée en utilisant un rhéomètre Malvern Kinexus Pro+ qui se base sur la méthode de cisaillement en vitesse imposée par rampe en mode continu à température constante. La masse volumique est mesurée par un densimètre liquide basé sur la méthode de la fréquence d'un tube en U oscillant rempli de la solution. La variation maximale de la tension de surface est de ± 2mN/m, ± 10 kg/m3 pour la masse volumique et ± 0,5 mPa.s pour la viscosité entre les différents échantillons de fluides préparés. Ces variations englobent l'incertitude des mesures et les erreurs cumulées lors de la préparation des mélanges.

III.3 Conditions expérimentales

Afin de définir les conditions expérimentales de débit, on s'appuie sur un cas de référence basé sur une condition représentative d'un fonctionnement industriel : une colonne de séparation de diamètre de 1 m contenant du Mellapak^{TM} 250Y opérant à un taux d'arrosage de 20 m^3/m^2/h et une vitesse superficielle de gaz de 2 m/s. La distance séparant les plaques du Mellapak^{TM} 250Y étant de 15 mm, il y a 65 plaques dans une colonne de 1 m. Le débit par plaque est donc d'environ 240 L/h. Il y a par conséquent 120 L/h de chaque côté de la plaque. Ainsi, la gamme de débit liquide de notre dispositif

expérimental est fixée entre 80 L/h et 180 L/h. Le débit de gaz est quant à lui compris entre 20 m^3/h et 90 m^3/h, ce qui correspond à une vitesse de gaz comprise entre 1 et 5 m/s dans notre dispositif compte tenu de la distance séparant la plaque en verre de la plaque solide (12 mm) et de la largeur de la plaque (500 mm).

Avant chaque expérience, la plaque est totalement mouillée afin de faciliter l'étalement du film sur toute la surface. Malgré toutes les précautions prises, le liquide ne s'étale pas uniformément sous certaines conditions (θ < 5° et θ > 20°) et suit des chemins préférentiels dans le cas de la plaque plane. C'est la raison pour laquelle les expériences sur plaque plane ont été réalisées dans cet intervalle, précisément à 10° et 20°.

Pour le cas de la plaque ondulée transversale, à 10° et 20° d'inclinaison, le liquide forme des zones stagnantes entre les crêtes des corrugations d'épaisseur suffisante pour induire la saturation du capteur de la caméra lors de l'acquisition des images de l'écoulement. En outre, ce liquide stagnant sort du cadre de notre étude car ce phénomène n'est pas présent dans les colonnes à garnissage structuré. De ce fait, les expériences sur plaque ondulée ont été effectuées à une inclinaison de 60°. Au-dessus de cet angle, le liquide suit des chemins préférentiels malgré les ondulations de la plaque d'étude. Il est intéressant de noter que les corrugations permettent de stabiliser l'écoulement jusqu'à des angles de plaque aussi élevés que 60°.

Pour la plaque Mellapak™ 250Y, le changement du système d'injection liquide a permis d'effectuer les expériences à la verticale ($\theta = 90°$) et de se rapprocher ainsi des conditions industrielles. Les tests à contre-courant gaz n'ont pu être réalisés que sur la plaque plane. Dans les configurations actuelles de géométrie et dimension des plaques corruguées, la vitesse du contre-courant gaz atteint des valeurs importantes au niveau des crêtes des corrugations puisque la distance entre la plaque en verre et les plaques d'étude est minimale à ce niveau. Cette augmentation de vitesse de gaz en présence de corrugations provoque l'apparition de déferlements liquides (déferlantes) ainsi que des épaisseurs de film importantes. Ces phénomènes induisent des projections de gouttes sur la plaque en verre qui perturbent le signal collecté par la caméra sur l'ensemble de la fenêtre de mesure. Dans le but de résoudre ce problème, la distance séparant la plaque en verre et les plaques d'étude a été augmentée jusqu'à 3 cm, ce qui représente l'écart maximal possible sur ce dispositif expérimental afin de maintenir une étanchéité au gaz sur les bords. Malgré cette augmentation, les gouttelettes liquides étaient toujours présentes au niveau de la fenêtre de mesure. Le **Tableau III-2** résume l'ensemble des conditions opératoires sur chaque plaque.

***Tableau III-2** : Conditions opératoires sur chaque plaque d'étude.*

Plaque	Inclinaison θ	Débit liquide Q_L(L/h)	Débit Gaz Q_G (m³/h)
Plane	10° et 20 °	80 < Q_L < 180	0 < Q_G < 120
Corruguée transversale	60 °	80 < Q_L < 180	Q_G = 0
Mellapak™ 250Y	90 °	60 < Q_L < 200	Q_G = 0

III.4 Mise en œuvre des techniques de mesure de l'épaisseur et de la vitesse

Les méthodes basées sur la fluorescence sont utilisées pour quantifier l'épaisseur, la vitesse interfaciale du film liquide et le coefficient de transfert de matière côté liquide. Dans cette partie, on rappelle le principe physique de la fluorescence puis la mise en œuvre pour la problématique de nos essais ainsi que les étapes suivies pour le traitement du signal de fluorescence. Les caractéristiques du système optique composé d'une caméra et de sources lumineuses sont également présentées.

III.4.1 Principe de la fluorescence

Le principe du phénomène de fluorescence se déroule en trois parties (**Figure III.6**) :

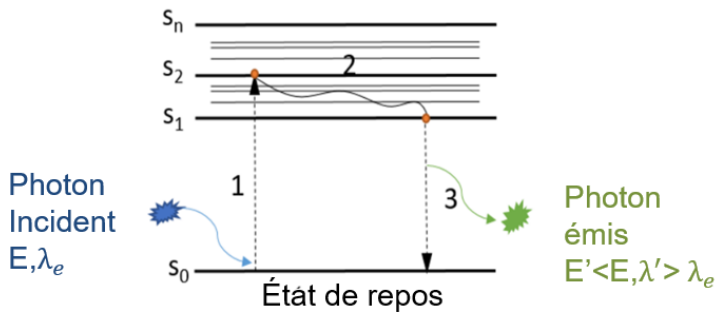


***Figure III.6.** Principe d'excitation et de désexcitation de la fluorescéine.*

Etape 1 : Excitation

Un photon ayant une énergie E est fourni par une source externe telle qu'une lampe ou un laser. En absorbant l'énergie d'un photon un électron de la molécule du fluorophore passe d'un état quantique stable S_0 à un état excité S_2. Pour illuminer le fluorophore, il est important d'utiliser une lumière ayant une longueur d'onde λ_e la plus proche possible du maximum d'absorption de ce fluorophore pour avoir le maximum d'intensité de fluorescence.

Etape 2 : perte d'énergie

Au cours de cette étape, le fluorophore subit des changements internes et il est soumis à une multitude d'interactions possibles avec son environnement moléculaire. Les électrons perdent un peu d'énergie sous différentes formes comme le rayonnement et des conversions internes pour se retrouver à un état d'excitation quantique inférieur, S_1.

Etape 3 : désexcitation

Durant son retour de l'état excité S_1 à l'état stable S_0, un électron libère un photon d'énergie E' inférieure à l'énergie du photon d'excitation : on parle d'une émission de lumière. La longueur d'onde d'excitation est plus faible que la longueur d'onde d'émission ce qui crée un écart entre les longueurs d'ondes maximales des spectres lumineux d'excitation et d'émission fluorescente, nommé écart de Stokes. Plus cet écart est grand, plus simple est la discrimination de la fluorescence.

III.4.2 Application aux mesures

L'émission de lumière de fluorescence peut être exploitée et présente un avantage majeur pour la mesure de l'épaisseur du film et de la vitesse comme décrit dans le Chapitre II:. Pour un film liquide d'épaisseur δ contenant une concentration uniforme de fluorophore dissous et excité par un faisceau incident d'intensité I_e, l'intensité de fluorescence émise en fonction de l'épaisseur du film est décrite par la loi suivante :

$$I_f = \emptyset\, I_e\left[1 - e^{(-\tau\delta)}\right] \qquad \textit{Eq. III.1}$$

Dans cette équation $\emptyset$ représente le rendement quantique du fluorophore utilisé et τ le coefficient d'absorption. Cette relation peut se réduire à une relation linéaire dans le cas de faibles épaisseurs de fluide (< 2000 µm).

Le lien entre l'épaisseur du film liquide et l'intensité de fluorescence est obtenu expérimentalement par une courbe d'étalonnage essentiellement linéaire puisque l'intensité et l'épaisseur sont proportionnelles. Cela nécessite alors l'utilisation d'un fluorophore adapté dont l'intensité ne varie qu'en fonction de l'épaisseur du film liquide.

Pour le calcul de la vitesse à l'interface liquide, les images de l'intensité de fluorescence présentent suffisamment de textures locales, sauf dans les conditions de régime d'écoulement de Nusselt (cf. section II.2.4). Ces textures principalement générées par les ondulations et les crêtes des vagues liquides, permettent d'utiliser le flot optique pour estimer le déplacement en pixels. Ce déplacement en pixels est converti en déplacement métrique par calibration optique.

Le choix du fluorophore doit répondre à plusieurs critères :

- Non intrusif : pas de fort impact sur les paramètres physico-chimiques des fluides.
- A concentration constante, son intensité de fluorescence doit être liée uniquement à l'épaisseur du film liquide.
- Non toxique.

Ainsi, le fluorophore choisi est de la fluorescéine ($C_{20}H_{10}O_5$) dissous dans la phase liquide à une concentration de 20 mg/L dont l'intensité ne dépend que de l'épaisseur du film liquide. Grâce à ces avantages, ce fluorophore a été largement utilisé pour des applications similaires (Vitry, 2011 ; Kim & Kim, 2006).

III.4.3 Source lumineuse

Afin de quantifier l'épaisseur du film et la vitesse à l'interface par la méthode basée sur l'intensité de fluorescence, un système optique composé d'une source lumineuse et d'une caméra est utilisé. Dans le cas de l'utilisation de la fluorescéine, la source lumineuse doit fonctionner en mode continu et avec une intensité lumineuse constante durant les acquisitions d'images.

L'excitation maximale de la fluorescéine ($C_{20}H_{10}O_5$) se produit à une longueur d'onde comprise entre 450 et 480 nm et l'émission se produit à une longueur d'onde comprise entre 520 et 580 nm (Shah, 2015). Dans un premier temps, les expériences ont été effectuées avec une lampe UV à LED RX FIREFLEX de PHOSEON disponible au laboratoire, qui émet jusqu'à 8 W/cm^2. Cette lampe fournit un flux lumineux continu de spectre entre 380 et 420 nm. Bien que ces longueurs d'ondes soient inférieures au maximum d'absorption de la fluorescéine, cette source de lumière permet d'exciter suffisamment les molécules pour réaliser des mesures. Dans un deuxième temps, cette lampe a été remplacée par une lampe LED ILM-401B-M-bleu de HARDsoft® Microprocessor Systems dont l'éclairage est sous forme d'un faisceau circulaire. Cette lampe LED fonctionne en continu ou modulé, avec une longueur d'onde de 460 nm qui correspond à la valeur du maximum d'absorption de la fluorescéine. Pour la plaque corruguée transversale et la plaque Mellapak^{TM} 250Y, la lampe a été fixée pour donner un angle incident d'illumination de 25° par rapport au plan XZ (plan illustré dans les **Figures III.2** et **III.3**) et parallèle aux ondulations de la plaque pour éviter les ombres portées et les réflexions de lumière sur la surface de la plaque.

III.4.4 Caméras

L'étude de l'écoulement en film mince par fluorescence nécessite l'utilisation d'une caméra rapide (type Phantom V9.1) munie d'un objectif Nikkor 20 mm f\2.8D pour les mesures effectuées avec la lampe LED UV, et d'un objectif Nikkor 52 mm f\1.8D pour les mesures effectuées avec la lampe LED bleue. Cette caméra permet d'enregistrer les images de l'écoulement en niveaux de gris sur 14 bits. La

taille du capteur est de 1632×1200 pixels et sur chaque pixel une valeur de l'intensité de fluorescence est enregistrée.

L'objectif Nikkor 20 mm est réglé à f/4 afin de minimiser l'effet du vignettage et il est muni d'un filtre jaune afin de bloquer l'éclairage de la lampe (380-420nm) et de ne laisser passer que les longueurs d'onde supérieures à 460 nm. Le spectre d'émission de fluorescence (520-580 nm) est ainsi le seul spectre capté par la caméra.

L'objectif Nikkor 52 mm est réglé à f/2.8 afin de réduire l'effet du vignettage, et il est muni aussi d'un filtre passe-haut qui bloque l'éclairage de la lampe LED bleue (460 nm) et laisse uniquement passer la lumière aux longueurs d'ondes supérieures à 520 nm.

Les paramètres de la caméra sont réglés en utilisant le logiciel Phantom PCC 3.4 :

- Démarrage de la caméra
- Enregistrement du zéro de référence en utilisant la fonction CSR du logiciel
- Réglage de la fréquence d'acquisition (nombre d'images par seconde) qui est respectivement de 120, 150 et 300 Hz pour la plaque plane, corruguée transversale et Mellapak^{TM} 250Y.

Le réglage de la fréquence est lié à la vitesse de l'écoulement et à l'application de la méthode de flot optique sur les différentes plaques d'étude. Le déplacement d'un point lumineux dans le film liquide doit être inférieur à 10 pixels dans la fenêtre de mesure. La vitesse plus élevée de l'écoulement dans la configuration de la plaque Mellapak^{TM} 250Y impose donc une fréquence d'acquisition plus élevée.

Le logiciel Phantom PCC 3.4 permet d'enregistrer les fichiers vidéo de l'écoulement en niveaux de gris. Ces vidéos représentent des séquences de 1000 images enregistrées sur des fréquences de 120, 150 et 300 Hz selon les plaques.

La caméra reste toujours dans la même position, orthonormale au plan XY (plan illustré dans les **Figure III.2** et **Figure III.3**). La caméra est allumée au moins 30 minutes avant les prises d'image pour qu'elle soit stabilisée thermiquement.

III.4.5 Traitement du signal de fluorescence

Les vidéos enregistrés en utilisant le logiciel Phantom PCC 3.4 sont découpées à l'aide du même logiciel en une séquence d'images au format (.TIFF) sur 16 bit, ce qui entraine un passage de 14 bit (0 à 16383) à 16 bit (0 à 65535) mais sans impact sur la valeur de l'intensité de fluorescence. Chaque image est subdivisée alors en pixels contenant l'information de l'intensité de fluorescence enregistrée par le capteur de la caméra.

Une fois les images brutes enregistrées, des corrections numériques sont appliquées pour éliminer des bruits liés au système optique (objectif et éclairage), à la soustraction du noir, et à l'absorption de la plaque en verre du dessus. L'application de la méthode de l'intensité de fluorescence pour la mesure de l'épaisseur du film liquide est bien rapportée dans la littérature comme dans les travaux de Njifenju

et al. (2013) ; Argyriadi et al. (2006) ; Johnson et al. (1998). Cependant, seules quelques études comme celle de Vitry (2011) ont décrit les étapes à suivre pour convertir l'intensité lumineuse en épaisseur de film tout en appliquant la procédure de correction adéquate. Ces corrections appliquées dans l'ordre ainsi que l'étape de calibration sont présentées dans l'organigramme en **Figure III.7** et détaillées dans ce qui suit de cette partie. Les images sont corrigées numériquement en utilisant des codes développés sous Matlab®. Une fois ces corrections appliquées, une calibration permet de convertir le niveau de gris en épaisseur du film liquide.

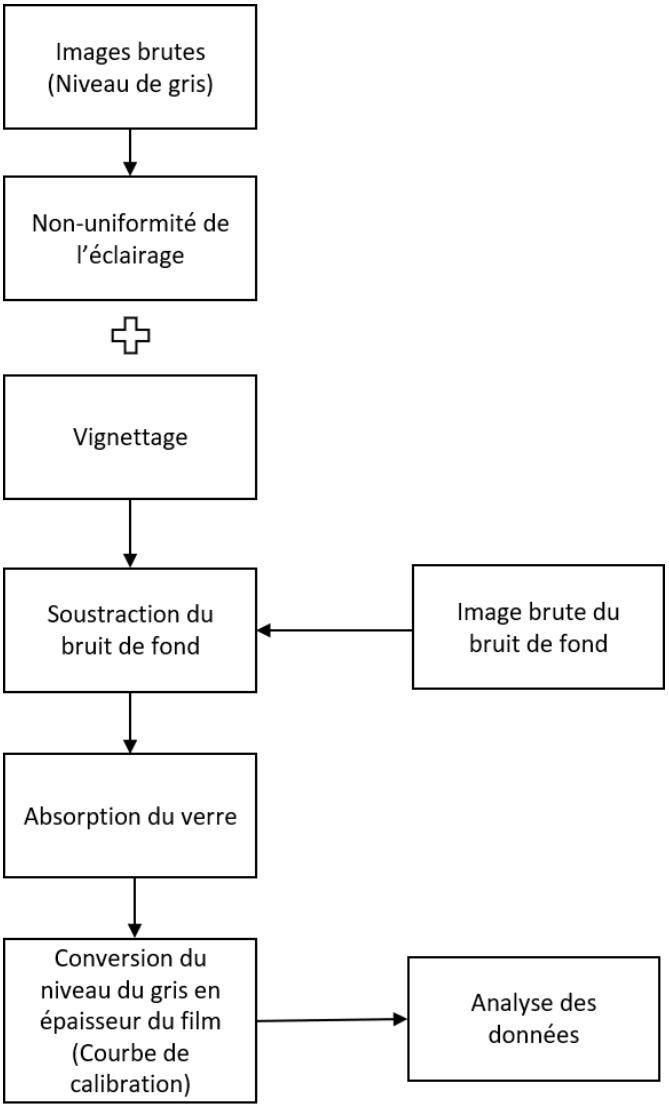


Figure III.7. *Différentes étapes de correction numérique.*

<u>Non-uniformité de l'éclairage</u>

La répartition spatiale de l'intensité de fluorescence est identifiée en éclairant un écoulement plat, sans ondes, par la lampe utilisée. L'image des niveaux de gris ainsi obtenue montre une disparité qui met en évidence une inhomogénéité de l'intensité lumineuse incidente sur l'ensemble de la fenêtre de mesure (**Figure III.8.a**). Cette disparité est principalement due à l'utilisation d'une source lumineuse considérée ponctuelle, dont le faisceau lumineux est rendu divergent pour éclairer une grande fenêtre

de mesure (300×250 mm^2 (**Figures III.2** et **III.5**)) ce qui génère un gradient d'intensité lumineuse sur la plaque. Dans cette situation il n'est pas possible de relier une intensité locale de fluorescence à une épaisseur de film.

Afin de résoudre ce problème, on génère d'abord une fonction qui reproduit la répartition d'intensité lumineuse. Une fonction Bspline est utilisée à cet effet. Elle est déterminée à partir d'une séquence de 800 images brutes acquises d'un écoulement sans ondes et moyennées pour former une image moyenne de fond (**Figure III.8.a**).

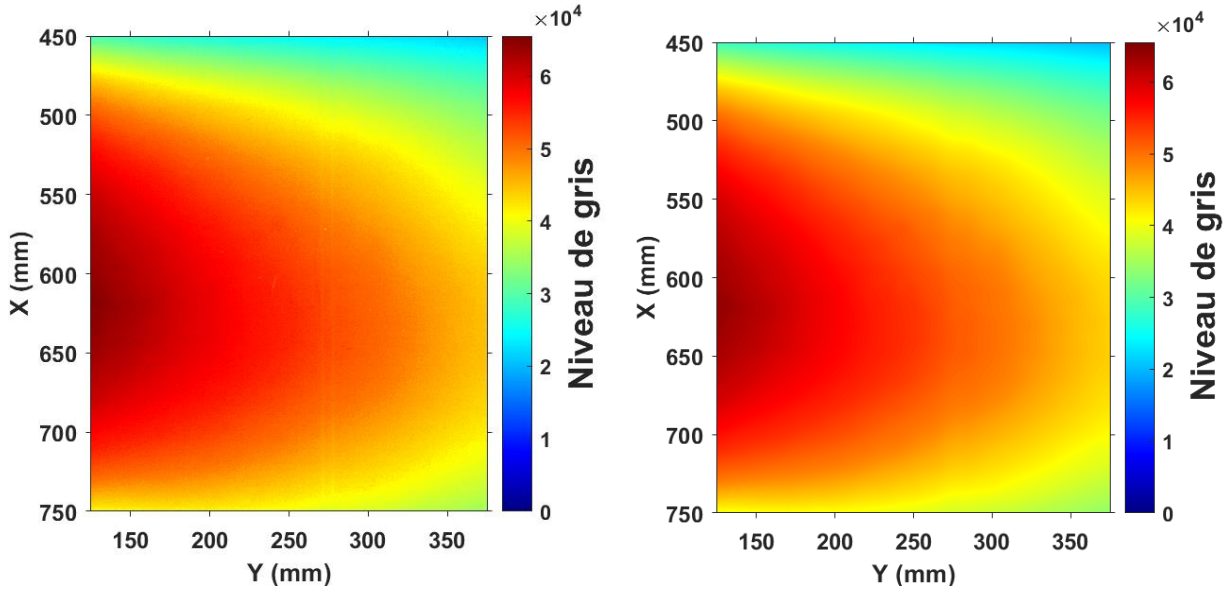


Figure III.8. *(a) : Image brute en niveau de gris montrant la non-uniformité de l'éclairage sur une épaisseur constante. (b) : Image Bspline après ajustement.*

Comme décrit dans Brunet et al. (2013), un produit tensoriel régularisé Bspline est ajusté aux intensités des images (Dierckx, 1994). Les points de contrôle p de la surface Bspline sont obtenus en résolvant le problème d'optimisation linéaire des moindres carrés suivant :

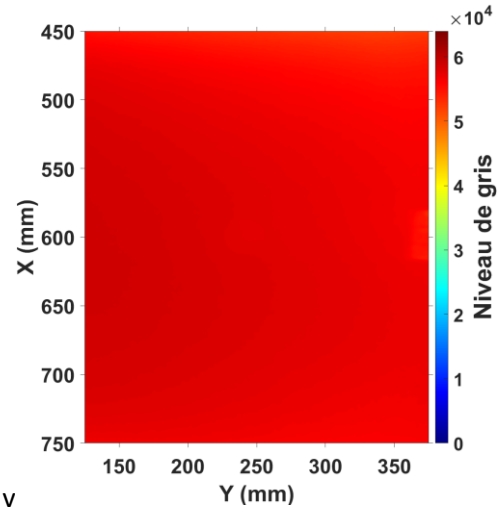
$$\min_{p} \sum_{(x,y)\in\Omega} \left(B_p\,(x,y) - I\,(x,y)\right)^2 + \lambda \iint_{(x,y)\in\Omega} \left[\sum_{d=0}^{2} \frac{\partial^2 B_p}{\partial^2 x\, \partial^{2-d} y}\,(x,y)\right]^2 dxdy \qquad \textbf{Eq. III.2}$$

Où le premier terme mesure la proximité de la surface aux données de l'image et le second terme pénalise l'énergie de flexion de la surface ajustée. Le paramètre λ contrôle le compromis entre les deux aspects. La **Figure III.8.b** montre le résultat de la surface Bspline obtenue avec l'image brute.

On utilise ensuite cette fonction Bspline pour normaliser les images brutes obtenues avec d'autres écoulements en utilisant la valeur maximale de l'image Bspline :

$$I_{Corrigée}(x,y) = \frac{I_{Brute}(x,y)}{I_{Bspline}(x,y)} \times I_{Bspline,Max} \qquad \textit{Eq. III.3}$$

Où $I_{corrigée}$ et I_{brute} sont le niveau de gris corrigé et brut respectivement, $I_{Bspline}$ est l'image résultante de **Eq. III.2** et $I_{Bspline,Max}$ la valeur du niveau de gris maximale de $I_{Bspline}$. La **Figure III.9** illustre le résultat de l'application de **Eq. III.3** sur l'image initiale. Comme attendu l'image ainsi obtenue est quasi homogène et montre que la fonction corrige jusqu'à 98% de la disparité de l'éclairage.



v

Figure III.9. *Image corrigée de l'écoulement à épaisseur constante en appliquant la fonction Bspline.*

Vignettage

Le vignettage se caractérise par un éclairement moindre dans les zones périphériques des images enregistrées. Il est dû à l'objectif de la caméra, dont les propriétés sur les bords sont inférieures à celles du centre. L'effet du vignettage est pris en compte durant la correction de la non-homogénéité de l'éclairage décrit précédemment puisque le détecteur de la caméra ne fait pas la distinction entre la non-homogéité de la lampe et celle générée par l'objectif.

Absorption du verre

La correction liée à l'utilisation d'une plaque de verre est due à l'absorption d'une partie de la lumière par cette plaque. Cette absorption dépend du matériel utilisé qui est, dans notre cas, le verre Borofloat® 33. Elle est décrite par la loi de Beer-Lambert :

$$I_{Corrigée}\,(x,y) \;=\; I_{Brute}(x,y)\; e^{-\alpha l} \qquad \textit{Eq. III.4}$$

Avec $I_{Corrigée}$ et I_{Brute} le niveau de gris corrigé et brut respectivement, α le coefficient de transmission et l la distance parcourue par le faisceau lumineux à travers le verre. Dans la gamme des longueurs d'onde de notre étude, la transmission est supérieure à 90 % pour une épaisseur de verre de 9 mm. En utilisant l'équation de Beer-Lambert, le coefficient de transmission est estimé à 21 m^{-1}. Sur chaque

pixel de l'image, l'intensité de fluorescence brute est corrigée en appliquant **Eq. III.4**. Cette correction ne prend pas en compte la déviation du chemin optique en passant par la plaque en verre qui est supposée négligeable et par suite la valeur de la distance parcourue l est supposée constante.

Soustraction du bruit de fond

Malgré l'anodisation et donc le noircissement de la plaque d'étude, il est essentiel de caractériser la réflexion de la lumière afin d'éliminer les bruits de cette dernière. Pour cela des images de la plaque étudiée sont enregistrées en absence de phase liquide et d'éclairage. Ces images sont moyennées afin d'obtenir l'image de référence qui représente le bruit de fond. Cette image est ensuite corrigée par la fonction Bspline et utilisée pour éliminer l'intensité de réflexion de la lumière en appliquant une soustraction : la valeur du pixel de l'image de référence (noir) est soustraite de la valeur du pixel de chaque image d'un écoulement enregistré :

$$I_{corrigée}(x,y) = I_{brute}(x,y) - I_{noire}(x,y) \qquad \textit{Eq. III.5}$$

Calibration

Une courbe d'étalonnage est établie pour corréler l'intensité de fluorescence, mesurée en niveau de gris, à l'épaisseur de film de manière précise. Dans ce but, 30 creusets ayant une profondeur connue allant de 20 µm jusqu'à 10050 µm (± 10 µm) sont fabriqués avec une attention particulière. Tout d'abord chaque plaque est entièrement surfacée afin d'obtenir un pavé d'aluminium le plus régulier possible. Les creusets sont ensuite réalisés par fraisage en utilisant la face supérieure des pavés comme référence. La profondeur de ces creusets en aluminium anodisé est vérifiée en utilisant une jauge de profondeur micrométrique. Chaque creuset est rempli de liquide puis recouvert par une plaque de verre ayant la même épaisseur et les mêmes caractéristiques que la plaque posée au-dessus des plaques d'étude. Cette plaque en verre est utilisée pour que l'épaisseur du film soit égale à la profondeur du creuset. Chaque creuset est positionné au milieu de la fenêtre de mesure et exposé à la lumière bleue, et l'intensité de fluorescence est acquise par la caméra. Ensuite, la valeur de la moyenne de l'intensité de fluorescence sur les 25 pixels du milieu du creuset est utilisée pour tracer la courbe d'étalonnage. Les mêmes mesures sont effectuées pour chaque creuset seul en positionnant à chaque fois son centre au milieu de la fenêtre de mesure. Une seconde mesure est ensuite réalisée avec des creusets vides pour obtenir l'image du bruit de fond.

La courbe d'étalonnage (**Figure III.10.b**) montre qu'il est impossible de quantifier des épaisseurs supérieures à 8000 µm en raison de la saturation du signal de fluorescence. Comme mentionné dans la section III.4.2, l'équation **Eq. III.1** qui décrit l'intensité de fluorescence en fonction de l'épaisseur du film est considérée linéaire pour de faibles épaisseurs. Cette linéarité est observée sur la **Figure III.10.b** pour des épaisseurs inférieures à 2000 µm.

Une fois l'équation de conversion du niveau de gris en épaisseur de film obtenue, un creuset d'épaisseur connue, qui n'a pas été utilisé dans la procédure d'étalonnage, est rempli de fluide et éclairé par la lampe. Une acquisition du niveau du gris est enregistrée par la caméra et l'image brute est corrigée par les différentes étapes de corrections illustrées dans la **Figure III.7**, et ensuite la conversion du niveau de gris en épaisseur est effectuée en utilisant la courbe d'étalonnage. La procédure d'étalonnage est validée en comparant la valeur de la profondeur obtenue à la vraie valeur connue de 725 µm. L'erreur est ainsi estimée à ± 5%.

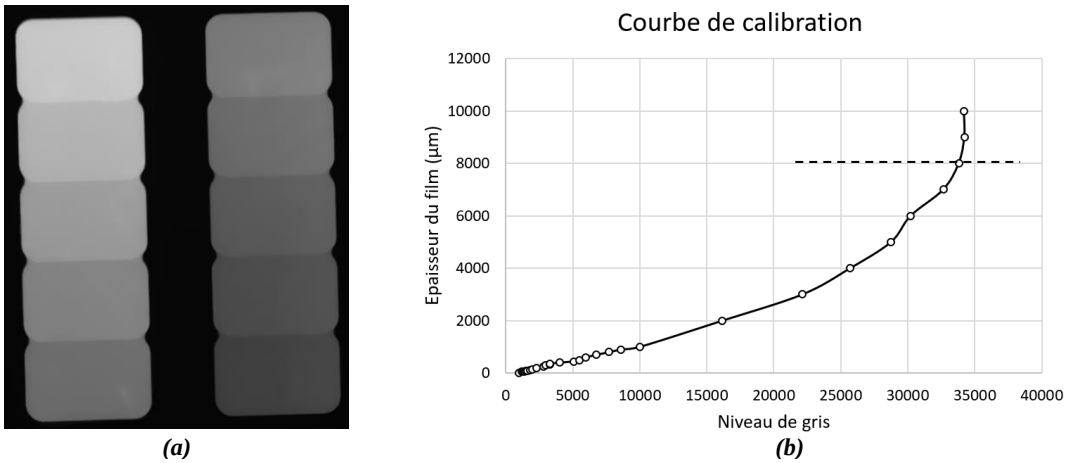
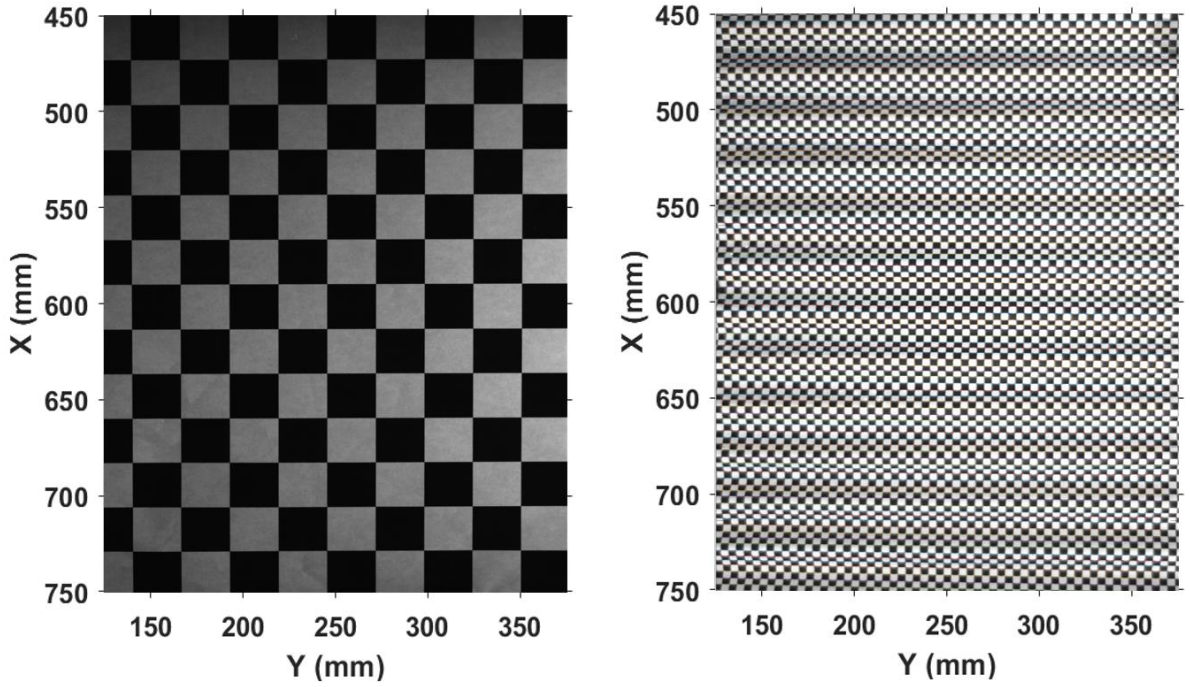


Figure III.10. *(a) : Image brute d'une plaque de 10 creusets. (b) : Courbe de calibration avec les 30 creusets.*

III.4.6 Calibration pour la mesure de la vitesse à l'interface gaz-liquide

Pour calculer un grand nombre de champs de vitesse avec précision et efficacité temporelle, le portage du code de flot optique GPU, développé par Ershov (2015) a été réalisé vers un environnement Windows. Comme le schéma de résolution du problème de flot optique mis en œuvre dans ce dernier code est différent de celui utilisé par Deqing Sun (2008), il a été validé en appliquant différents déplacements imposés numériquement sur l'une de nos images de film en écoulement réel. Expérimentalement, 1000 images consécutives séparées par Δt = 8,33 ms ont été utilisées pour calculer la vitesse moyenne à l'interface liquide. Le résultat brut de la méthode de flot optique est un champ de déplacement en pixels. Pour obtenir la vitesse réelle en mètres par seconde, une étape de calibration spatiale est nécessaire. Pour se faire, des images de damiers souples, dont toute la surface est plaquée aux surfaces d'étude, sont acquises (**Figures III.11.a** et **III.11.b**). En utilisant Matlab, chaque coin des carrés des images est automatiquement détecté et en connaissant leur position métrique réelle, une fonction de correspondance est déterminée entre le repère image (unité en pixel) et le repère physique (unité métrique).

Dans le cas de la plaque plane, la projection du déplacement du film liquide sur le capteur de la caméra dépend uniquement des axes X et Y (**Figure III.11.a**) ce qui facilite la calibration alors que dans le cas des plaques corruguées le déplacement dépend de l'axe X, Y et Z (**Figure III.11.b**). Ces corrugations provoquent des déformations des motifs en damier des mires (**Figure III.11.b**) ce qui implique une erreur de calibration. Pour cela, la calibration dans le cas des plaques corruguées est plus compliquée puisqu'elle nécessite de détecter la position des crêtes et des creux afin d'effectuer une reconstruction de l'interface de la plaque pour détecter l'angle de corrugation sur chaque pixel de la fenêtre de mesure. La détection des crêtes et des creux est effectuée selon la dimension du carré. Le carré apparaissant le plus grand est situé au niveau de la crête et le carré apparaissant le plus petit est situé au niveau des creux. Afin d'identifier les crêtes et les creux de la plaque corruguée transversale, la mire de damier utilisée pour la plaque plane (longueur du côté = 22 mm) est remplacée par une autre mire de damier avec des carreaux plus petits (longueur du côté = 4 mm). Ceci est nécessaire pour ne pas perdre l'information liée à la position des crêtes et des creux. Si on utilise les grands carreaux, il serait impossible de connaitre les positions en appliquant la méthode basée sur la dimension des carreaux. Cette reconstruction permet de détecter un facteur de calibration sur chaque pixel de la fenêtre de mesure.



(a) *(b)*

Figure III.11. *Image de mire en damier sur (a) plaque plane (b) : plaque ondulée transversale.*

Dans le cas de la plaque Mellapak^{TM} 250Y, la caméra a été tournée d'un angle de 45° afin d'obtenir une acquisition des mires du damier similaire à celles obtenus sur la plaque corruguée transversale (**Figure III.11.b**). Cette rotation de 45° permet de limiter la déformation des motifs des mires du damier

uniquement dans le sens de la corrugation ce qui facilite la détection de la position des crêtes et des creux pour la calibration.

III.5 Mise en œuvre de la méthode de mesure du transfert de matière

Dans cette partie, les étapes suivies pour effectuer les mesures de transfert de matière local par la méthode d'absorption de l'oxygène sont détaillées. Une technique basée sur le temps de vie de fluorescence est utilisée (cf. section II.3.1). Le choix du fluorophore ainsi que les conditions techniques d'applications de cette méthode sont décrits. En parallèle, des mesures globales de transfert de matière ont été effectuées avec des sondes Unisense dont les caractéristiques et les différents points de mesure sont explicités dans ce qui suit. Les modifications effectuées sur le dispositif expérimental pour la mise en œuvre de ces méthodes sont présentées à la fin de cette partie.

III.5.1 Mesure par fluorescence 2-D dans le film liquide

Dans le cas de la mesure du transfert de matière, la méthode de temps de vie de fluorescence nécessite l'utilisation d'un fluorophore adapté. Comme mentionné dans la section II.3.3, après excitation de ce fluorophore l'intensité de fluorescence doit être dépendante uniquement de la concentration d'oxygène. Le complexe de ruthénium (Dichlorotris(1, 10-phenanthroline)ruthénium (II) $C_{36}H_{26}Cl_2N_6Ru$) répond à ce critère et a été utilisé dans ce travail. Contrairement à la fluorescéine, l'intensité de fluorescence de ce complexe est indépendante de l'épaisseur du film liquide. Le dispositif expérimental est complétement hermétique afin d'assurer que le transfert d'oxygène ne se fasse qu'à l'interface entre le film liquide et le gaz à contre-courant.

Pour la mise en œuvre de la méthode de temps de vie de fluorescence, la caméra Pco.film et la lampe LED ILM-401B-M-bleu de HARDsoft® Microprocessor Systems sont utilisées. Cette caméra fonctionne en utilisant un capteur CMOS à deux prises. La modulation synchronisée de l'éclairage et de la caméra permet d'analyser le temps de décroissance de la luminescence. Le capteur de cette caméra est de dimension 1008×1008 pixels avec une résolution maximale de 45 images par seconde et avec une marge de fréquence de modulation entre 0 et 40 MHz. Cette dernière est synchronisée à la lampe bleue. La fréquence de modulation est fixée à 250 Hz et la lampe émet une lumière ayant une longueur d'onde de 460 nm afin d'exciter la molécule du complexe de ruthénium. Le logiciel NIS-elements AR.5.30.0 de Nikon est utilisé pour le calcul automatique du temps de vie de fluorescence sur chaque pixel de la fenêtre de mesure. Ce calcul nécessite l'utilisation de 4 images successives au minimum afin de créer la sinusoïde présentée dans la **Figure II.13**. Une fois ce temps de vie calculé, l'équation (**Eq.**

II.8) permet de remonter à la concentration en oxygène locale sur chaque pixel de la fenêtre de mesure. A notre connaissance, ce travail représente la première application de la méthode de temps de vie de fluorescence pour mesurer le transfert d'oxygène dans un film mince ruisselant.

III.5.2 Mesure par sonde à oxygène

Une mesure globale de la teneur en oxygène dans le liquide à l'entrée et à la sortie de la plaque est également recherchée afin de calculer le flux d'absorption d'oxygène et de le comparer à celui obtenu d'après les mesures par fluorescence et valider ainsi cette nouvelle méthode. Pour cela, la concentration en oxygène est mesurée dans le réservoir opaque (**Figure III.1 – partie 5**) et à la sortie du dispositif expérimental au point illustré dans la **Figure III.12** en utilisant des sondes à oxygène Unisense. Ces sondes présentent des avantages majeurs : petite taille, excellent temps de réponse (< 0.3 s) et une large gamme de mesure. Le principe de fonctionnement de ces microsondes est basé sur la diffusion de l'oxygène vers une cathode réductrice de l'oxygène. La cathode réductrice est polarisée contre une anode interne Ag/AgCl. Le signal résultant de la sonde convertit le courant de réduction en un courant électrique de très faible intensité proche du picoampère et donc mesuré par un picoampèremètre (O_2 UniAmp) de haute sensibilité. Ce courant en picoampère est converti automatiquement en potentiel électrique exprimé en millivolt à l'aide du logiciel SensorTrace Logger (1 pA = 1 mV) et les valeurs sont enregistrées en mV dans le logiciel.

Les sondes sont pré-calibrées en usine et un signal en dessous de 20 mV correspond à une désoxygénation totale de la solution liquide (concentration nulle en oxygène). Dans notre étude, le signal en mV est utilisé pour le calcul de $k_L a$ comme détaillé plus loin dans la section V.5.2.

Les modifications effectuées sur le dispositif expérimental pour les mesures de transfert de matière sont présentées dans la **Figure III.13**. La plaque en verre qui avait initialement une longueur de 1140 mm et une largeur de 500 mm est découpée à la même dimension que la plaque Mellapak^{TM} 250Y (longueur de 650 mm et une largeur de 450mm) (**Figure III.3**) afin de confiner le gaz au-dessus de la plaque et éviter que le gaz ne passe par des chemins préférentiels sur les côtés. Le point d'injection de l'air est ainsi modifié comme illustré en vert dans la **Figure III.12**.

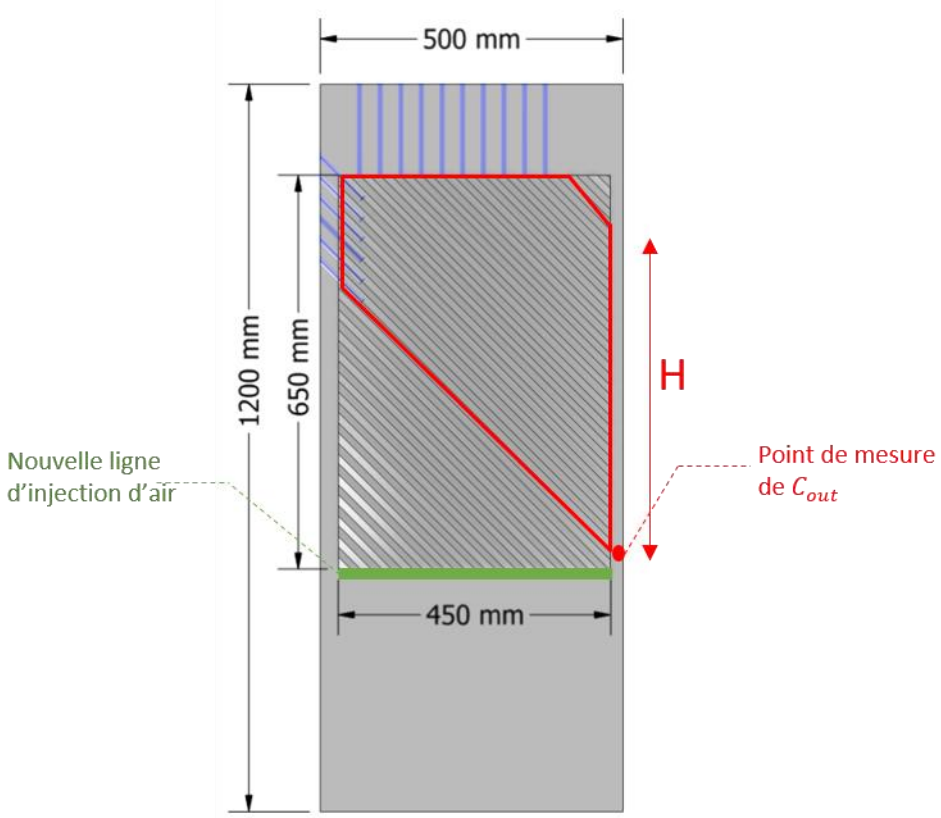


Figure III.12. *Position du point de mesure de C_{out} à la sortie et la nouvelle ligne d'injection de l'air.*

Le protocole expérimental suivi durant les expériences consiste à envoyer l'azote en continu dans le réservoir liquide grâce à un sparger durant toute la durée des expériences (**Figure III.13**) dans le but d'obtenir un liquide à concentration en oxygène à l'entrée C_{in} égale à zéro. Cependant, le signal mesuré dans le réservoir liquide diminue vers une valeur constante entre 50 et 70 mV mais n'atteint pas une valeur inférieure ou égale à 20 mV. Malgré les précautions prises en compte pour rendre le réservoir hermétique, ce dernier n'est pas parfaitement isolé de l'air ambiant. Une fois la valeur minimale atteinte dans le réservoir, les mesures du signal au point de sortie illustré dans la **Figure III.12** débutent. Le liquide est en contact avec l'air à contre-courant provenant de l'air ambiant qui est à 20% en oxygène. L'objectif est de mesurer le signal électrique en mV à l'entrée et à la sortie pour calculer le coefficient de transfert côté liquide $K_L a$.

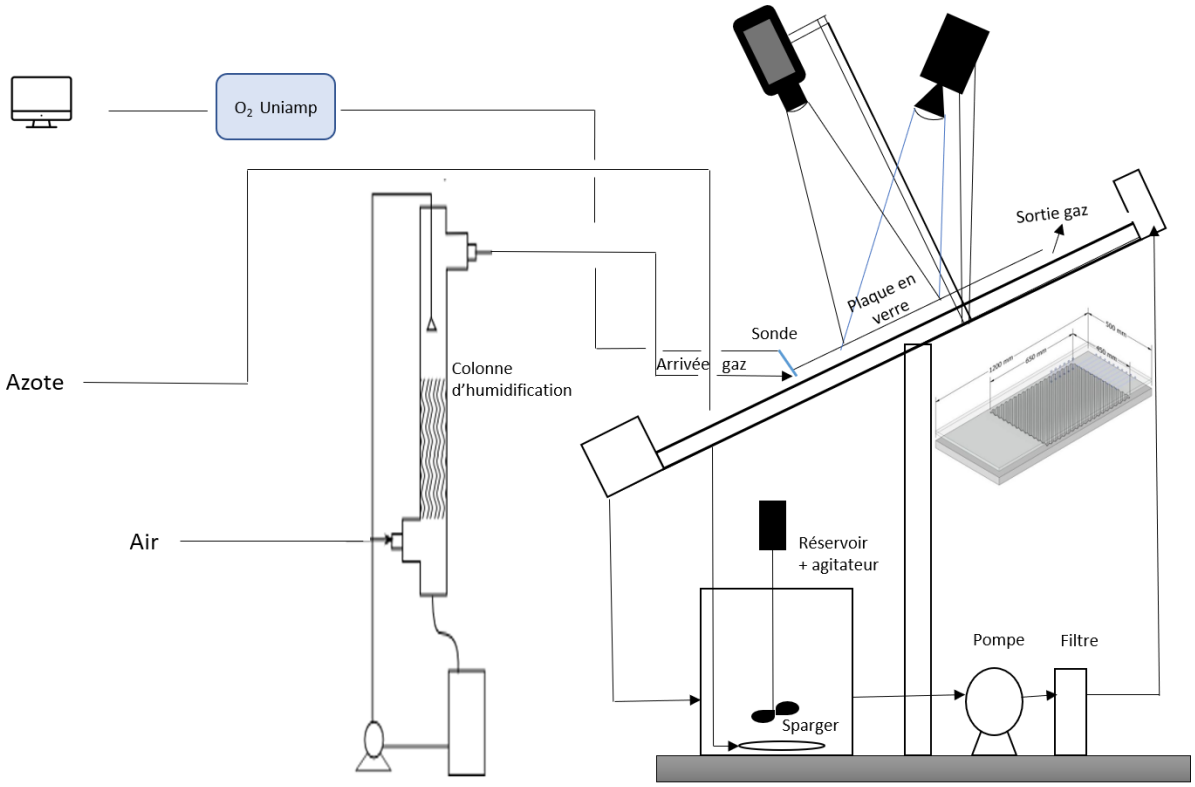


Figure III.13. *Schéma du dispositif expérimental modifié pour les mesures de transfert de matière.*

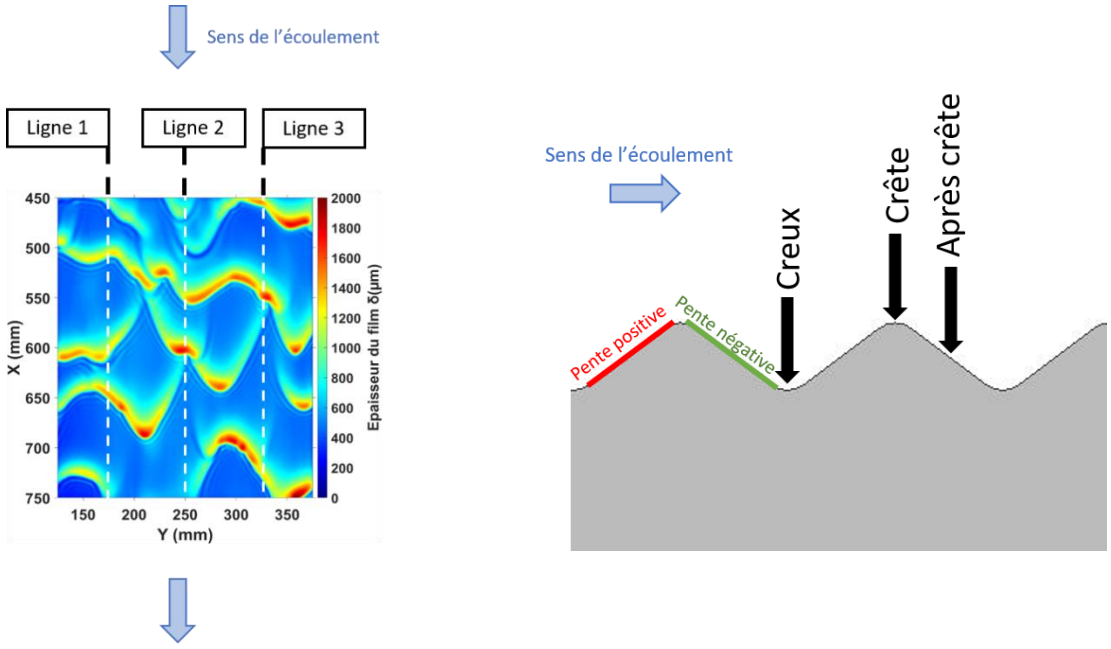
III.6 Traitement des données et mise en forme

III.6.1 Lignes d'étude

L'épaisseur du film liquide et la vitesse interfaciale rapportées dans ce travail sont calculées sur chaque pixel de la fenêtre de mesure en utilisant la courbe d'étalonnage et en appliquant l'ensemble des corrections mentionnées précédemment. Ces procédures sont appliquées sur des milliers d'images et les résultats sont présentés sous forme d'images et de vidéos. Celles-ci permettent de faire des comparaisons visuelles entre chaque configuration de plaque et entre différentes conditions opératoires. Les vidéos permettent de mettre en évidence simultanément la variation temporelle et spatiale de la structure de l'écoulement en film mince. Chaque acquisition réalisée avec la caméra donne accès à près de deux millions de valeurs de l'épaisseur du film. Ceci est intéressant pour une étude qualitative mais complique l'analyse quantitative. Pour faciliter cette dernière, les paramètres étudiés sont extraits de trois lignes de la fenêtre de mesure comme illustré sur la **Figure III.14.a** pour la plaque plane et corruguée transversale. La **Figure III.14.b** montre la position des points choisis pour étudier la distribution temporelle sur la plaque corruguée transversale.

Pour la plaque plane et corruguée transversale, ces lignes suivant la distance longitudinale sont choisies à Y = 175, Y = 250 et Y = 325 mm. L'espacement entre chaque ligne permet d'étudier

différentes zones de la fenêtre de mesure. Tous les résultats présentés sont obtenus dans une zone de la plaque située à 450 mm de l'entrée liquide et entre 140 et 360 des bords verticaux, pour éviter les effets de bord. Dans ces lignes, l'épaisseur enregistrée sur chaque pixel (1632 pixels) est utilisée pour étudier la variation spatiale de l'épaisseur tout au long de la distance en aval X (300 mm).

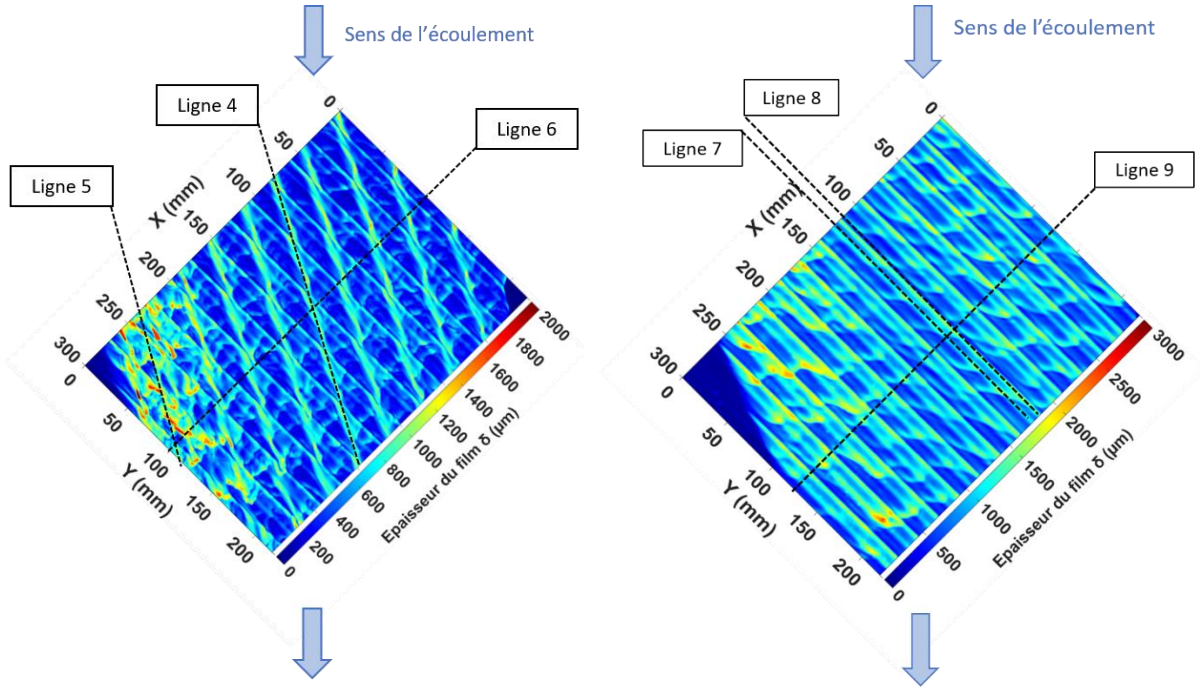


(a) *(b)*

Figure III.14. *(a) : Lignes d'intérêt dans la fenêtre de mesure sur la plaque plane et la plaque corruguée transversale (b) : Position des différents points choisies pour les distributions temporelles sur la plaque corruguée transversale.*

Pour la plaque Mellapak^{TM} 250Y, trois lignes sont également choisies pour suivre la variation de l'épaisseur du film. La **Figure III.15.a** illustre la position de ces lignes pour les fluides à faible tension de surface. L'objectif est de suivre le cheminement de l'écoulement de film liquide dans la fenêtre de mesure. Les lignes 4 et 5 varient selon le fluide étudié et par suite le nombre de pixels varie selon la position de ces lignes. Ces deux lignes permettent d'étudier l'impact du système d'injection liquide puisque la ligne 4 représente l'alimentation des tubes verticaux alors que la ligne 5 est au niveau des 6 tubes d'alimentation du côté. La ligne 6 est dans la trajectoire perpendiculaire à la direction des corrugations.

Pour les fluides visqueux, la structure de l'écoulement est différente de celle des fluides à faible tension de surface. Pour cette raison, le choix des lignes suivies est différent. La **Figure III.15.b** montre la position des lignes 7, 8 et 9. Ces lignes permettent de suivre l'évolution de l'épaisseur du film le long des crêtes (ligne 7), des creux (ligne 8) et dans la trajectoire perpendiculaire à la direction des corrugations (ligne 9 qui représente la ligne centrale).



(a) *(b)*

Figure III.15. *Lignes d'intérêt dans la fenêtre de mesure sur la plaque Mellapak^{TM} 250Y pour (a) : W-E1 et W-E2 (b) : W-G1, W-G2 et W-G3.*

III.6.2 Evolution de l'épaisseur moyenne, maximale et minimale

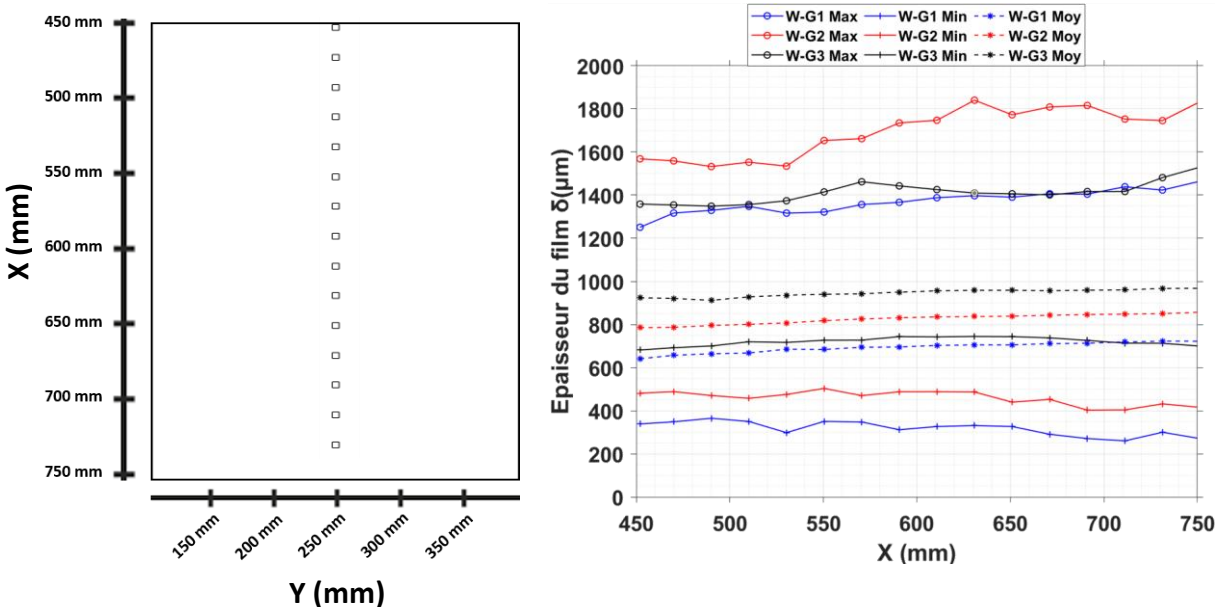
À partir de toutes ces données variant dans le temps et l'espace, il est également intéressant d'examiner la variation des valeurs maximales δ_{max}, minimales δ_{min} et moyennes δ_{moy} pour comprendre le taux de croissance des ondes primaires et aussi le substrat liquide qui représente l'épaisseur minimale du film δ_{min}.

La connaissance de l'épaisseur minimale est critique (Wei et al., 2020) dans les films tombants industriels rencontrés dans les processus de séparation et les systèmes de refroidissement pour le transfert de chaleur et de masse. Si le film liquide est très mince, il risque de s'évaporer et de disparaître, ce qui a pour conséquence de sécher les supports et de réduire l'efficacité des processus de transfert.

Les valeurs extrêmes de l'épaisseur du film liquide ont été analysées également par Drosos et al. (2004) ; Kofman et al. (2017) ; Takamasa & Hazuku, (2000) ; Vitry, (2011).

L'évolution de δ_{max}, δ_{min}, et δ_{moy} est étudiée ici en fonction de la distance en aval X. Les valeurs de δ_{max} et δ_{min} sont obtenues à partir de 15 positions le long de la ligne 2 de la plaque plane correspondant chacune à un pixel et séparées de 20 mm (**Figure III.16.a**). A chaque position les trois épaisseurs sont obtenues sur la base de mille images. La **Figure III.16.b** illustre les résultats en fonction de la distance

longitudinale pour les fluides W-G1, W-G2 et W-G3 sur plaque plane à θ = 20° et Q_L = 180 L/h et sans gaz à contre-courant.

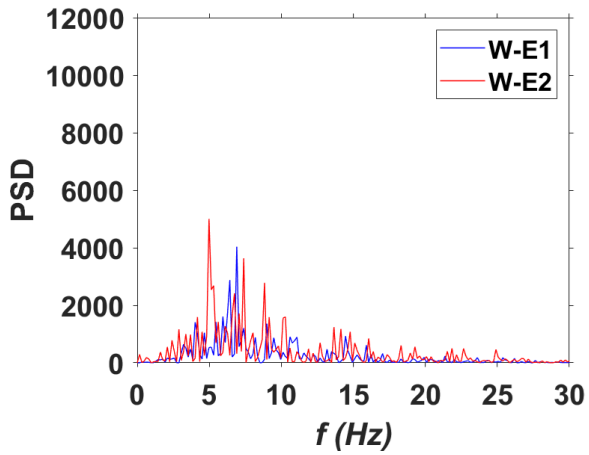


(a) *(b)*

Figure III.16. *(a) : Position de la zone centrale et des différents points de mesure et (b) : Variation axiale de l'épaisseur maximale δ_{max}, minimale δ_{min} et moyenne δ_{moy} pour W-G1, W-G2 et W-G3 sur plaque plane.*

III.6.3 Fréquence des ondulations

Un autre paramètre important dans l'étude des écoulements en film mince est la fréquence des ondes. La distribution de fréquence f est obtenue grâce à la variation temporelle de l'épaisseur du film sur le point central de la fenêtre de mesure en appliquant la transformation de Fourier. La fonction fft de Matlab® a été utilisée pour ce calcul. La **Figure III.17** illustre un exemple du spectre de Fourier représentant la fluctuation de l'épaisseur du film liquide et la fréquence correspondante. La densité spectrale de puissance PSD est en unité arbitraire.

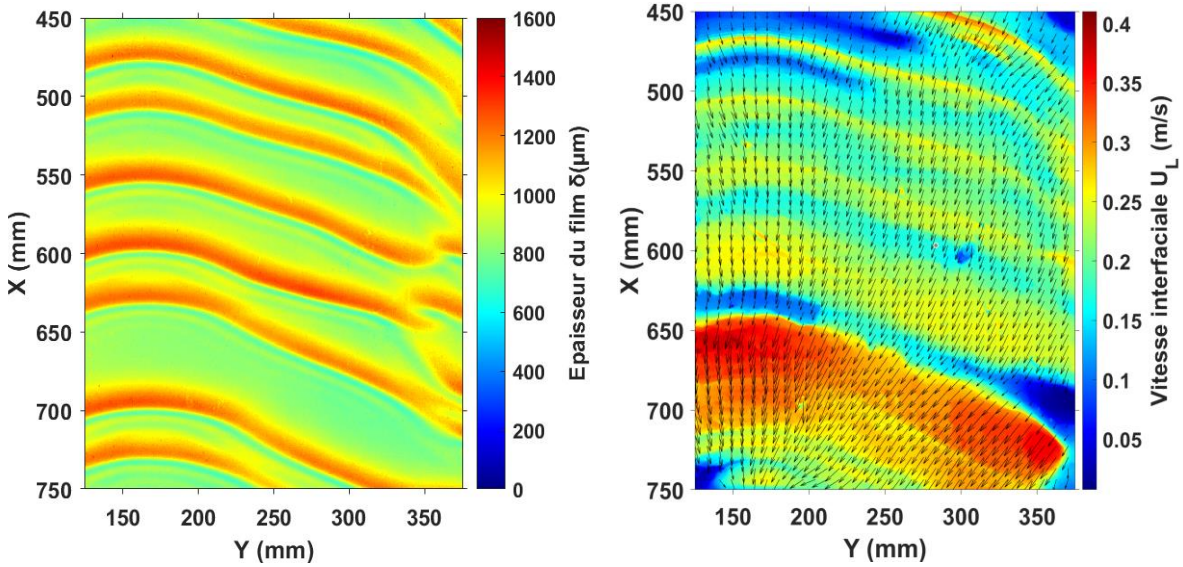


Θ=20°
W-E1: Ka = 913 - Re = 190
W-E2: Ka = 1927 - Re = 260
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m³/h

Figure III.17. *Densité spectrale de puissance pour différentes valeurs de fréquence pour W-E1 et W-E2.*

III.6.4 Vitesse à l'interface liquide

La méthode de flot optique calcule un déplacement en m/s sur chaque pixel de la fenêtre de mesure soient 1632×1200 valeurs de vitesse. Néanmoins, compte tenu du terme de lissage dans la résolution du flot optique, l'information de vitesse est moyennée spatialement sur des groupes de pixels. Les **Figures III.18.a** et **III.18.b** illustrent l'épaisseur du film et le résultat de calcul de la vitesse interfaciale par flot optique sur l'ensemble de la fenêtre de mesure.



µ = 15 mPa.s - Θ=20°
Ka = 129 - Re = 31
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m³/h

(a) ***(b)***

Figure III.18. *(a) : Epaisseur du film δ et (b) : vitesse interfaciale U_L pour W-G3 sur la plaque plane.*

Les variations instantanées à l'échelle locale de la vitesse à l'interface dans la ligne 2 (**Figure III.14.a**) sont analysées pour la plaque plane et corruguée transversale. La **Figure III.19** montre la superposition des résultats de l'épaisseur du film et de la vitesse à l'interface pour le fluide W-G3 dans les mêmes conditions que la **Figure III.18**. Ceci permet d'observer le couplage entre ces deux paramètres.

La vitesse interfaciale instantanée par flot optique est obtenue en calculant une moyenne glissante sur 10 images successives car dans le cas d'un écoulement avec front d'onde irrégulier, on constate que la vitesse interfaciale calculée converge à partir de 10 images successives. Sur cet intervalle le déplacement des ondes est suffisamment petit pour éviter de perdre la position des ondes. Ceci permet de relier les résultats de vitesse à l'épaisseur du film avec un décalage négligeable sur l'axe X. La 5ème image de ces 10 images est choisie pour représenter l'épaisseur du film dans la ligne 2 et un décalage non significatif peut être observé entre les résultats simultanés de l'épaisseur du film δ et la vitesse à l'interface U_L.

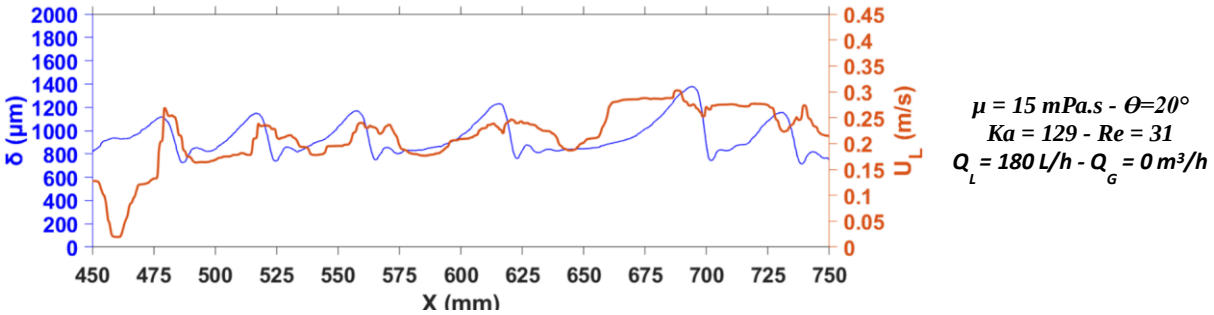


Figure III.19. *Distribution axiale de l'épaisseur du film liquide et de la vitesse interfaciale pour W-G3.*

III.6.5 $k_L a$ par mesure locale du transfert

Pour le calcul de transfert de matière local en utilisant la méthode de temps de vie de fluorescence, la concentration de l'oxygène peut être déterminée sur chaque pixel de l'image. La conversion en concentration d'oxygène est basée sur l'équation de Stern-Volmer :

$$\frac{\tau(x,y)}{\tau_0} = \frac{1}{1 + K \times C(x,y)} \qquad \textit{Eq. III.6}$$

Dans cette équation, $K\ (L/mg)$ représente la constante de Stern-Volmer, $C(x,y)\ (mg/L)$ la concentration de l'oxygène, $\tau(x,y)$ le temps de vie de fluorescence local en nanoseconde (ns) en présence de l'oxygène sur chaque pixel et τ_0 le temps de vie en absence d'oxygène.

À partir des champs de concentration en oxygène, il est possible numériquement de calculer un $k_L a$ local. Le calcul du transfert de matière local à chaque pixel est ainsi déterminé à partir des équations discrétisées de bilan matière. Ces calculs n'ont pas été développés en raison de problèmes expérimentaux rencontrés dans les mesures de concentration en oxygène (Chapitre V:).

III.6.6 $K_L a$ par mesure globale du transfert

Les sondes Unisense sont utilisées pour quantifier la teneur en oxygène dissous dans le film liquide. Le signal résultant de la sonde est en mV. Ce signal est utilisé pour le calcul de $K_L a$ global (entrée-sortie du dispositif) suivant l'équation suivante :

$$K_l a = \frac{U_L}{H} ln\left(\frac{C_{in} - C^*}{C_{out} - C^*}\right) \qquad \textit{Eq. III.7}$$

Dans cette équation, C_{in} (mg/L) représente la concentration du liquide dans le réservoir, C^* (mg/L) la concentration à saturation avec l'air, C_{out} (mg/L) la concentration de l'oxygène mesurée par la sonde à la sortie, U_L (m/s) la vitesse moyenne à l'interface obtenue par flot optique, H (m) la distance longitudinale (**Figure III.5**) et a (m^2) l'aire de la surface mouillée (**Figure III.5 - zone rouge**).

Chapitre IV: Etude expérimentale de l'instabilité de l'écoulement en film mince sur la plaque plane et la plaque corruguée transversale

Dans ce chapitre, les cas d'étude sont une plaque plane inclinée et une plaque corruguée transversale dont la géométrie est décrite en détails dans la section III.1.2. Pour cette dernière, une étude locale de l'impact des corrugations sur la dynamique de l'écoulement est effectuée.

Dans les sections IV.1 et IV.2, l'objectif est de mettre en avant l'influence des paramètres physico-chimiques des fluides (tension de surface σ et viscosité μ) sur la structure et la vitesse à l'interface des ondulations liquides ; ainsi les conditions expérimentales sont maintenues constantes (θ = 20° - Q_L = 180 L/h et θ = 60° - Q_L = 180 L/h pour la plaque plane et corruguée transversale respectivement).

Dans la section IV.3, l'impact du contre-courant de gaz sur le profil des ondulations liquides et la vitesse interfaciale est étudié uniquement sur la plaque plane pour les raisons mentionnées dans la section III.3.

Dans une dernière section (IV.4), le débit liquide des plaques d'étude est réduit afin d'étudier son impact sur l'hydrodynamique des écoulements en film mince. Pour la plaque plane, les paramètres hydrodynamiques sont comparés à deux angles d'inclinaison (θ = 10° et 20°).

IV.1 Epaisseur du film

IV.1.1 Topologie et profils d'onde

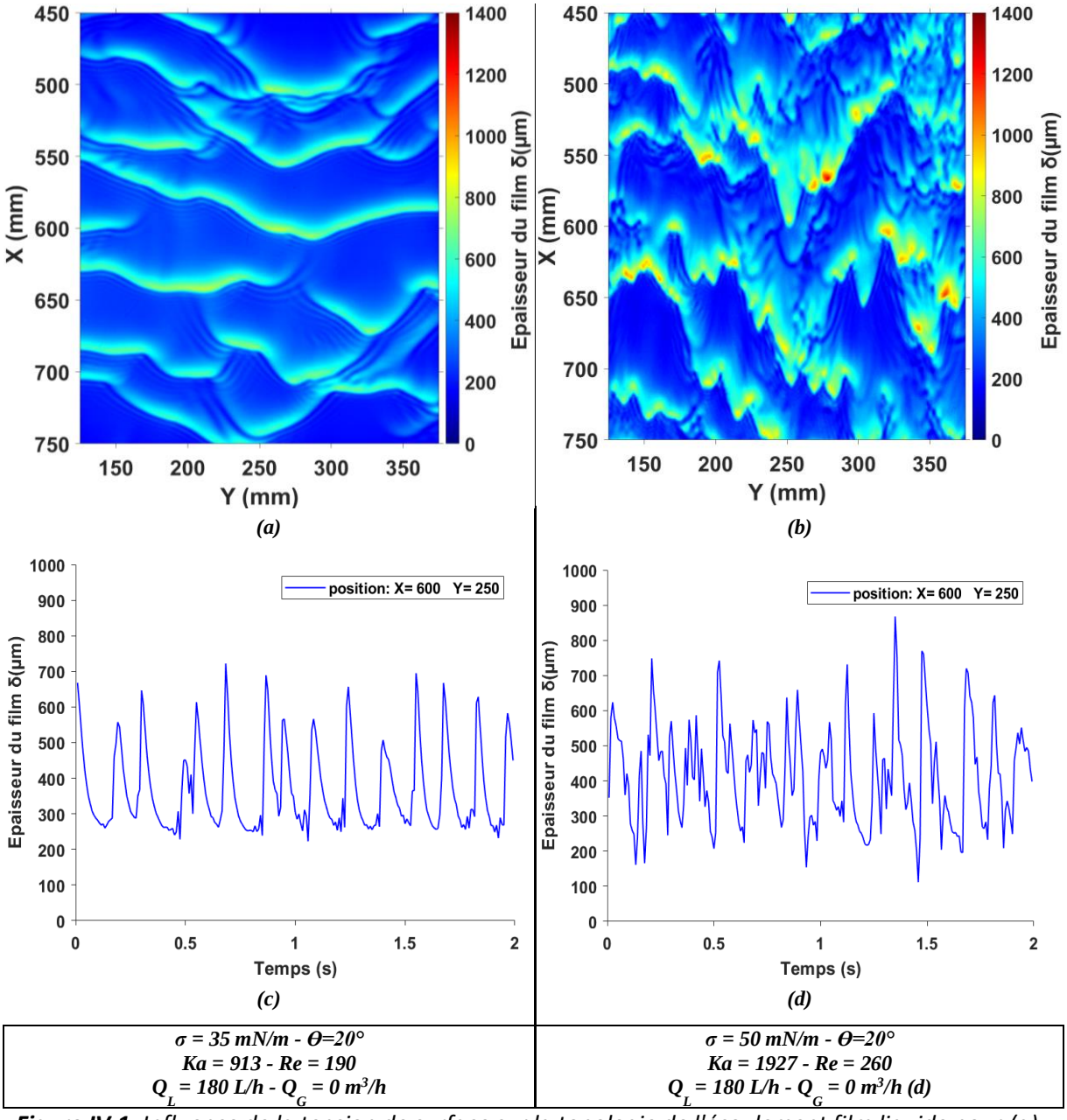
Plaque plane

Initialement, la plaque plane est placée à un angle d'inclinaison θ = 0° (horizontale) et le liquide alimente la plaque plane en continu à un débit élevé afin d'avoir un mouillage parfait de toute la surface de la plaque. Ensuite, la plaque d'étude est inclinée jusqu'à 10° ou 20°. Cette procédure permet de maintenir le mouillage parfait de la surface de la plaque.

Les **Figures IV.1.a** et **IV.1.b** présentent une observation générale de la structure des ondulations liquides pour les fluides W-E1 (σ = 35 mN/m) et W-E2 (σ = 50 mN/m) ruisselant sur la plaque plane à θ = 20° et Q_L = 180 L/h. Dans le cas du fluide W-E1, l'écoulement est plus stable avec des ondes en forme de U séparées par une large zone sans vague. L'existence de ces larges zones sans vague peut avoir un impact significatif sur l'efficacité des phénomènes de transfert de matière. En effet, les phénomènes d'échange entre la phase liquide et la phase gaz s'intensifient en présence d'ondes dans

la structure de l'écoulement à cause des recirculations liquides de qui apparaissent au niveau des crêtes des ondes.

La comparaison des résultats des fluides W-E1 et W-E2 montre un écoulement fortement instable dans le cas de W-E2 (tension superficielle la plus élevée) ainsi que l'apparition d'ondulations 3D en forme de W et d'ondes capillaires. Comme décrit dans les travaux de (Georgantaki et al., 2011), La diminution de la tension de surface a une influence stabilisante sur l'écoulement, en amortissant les vagues qui devraient apparaitre.



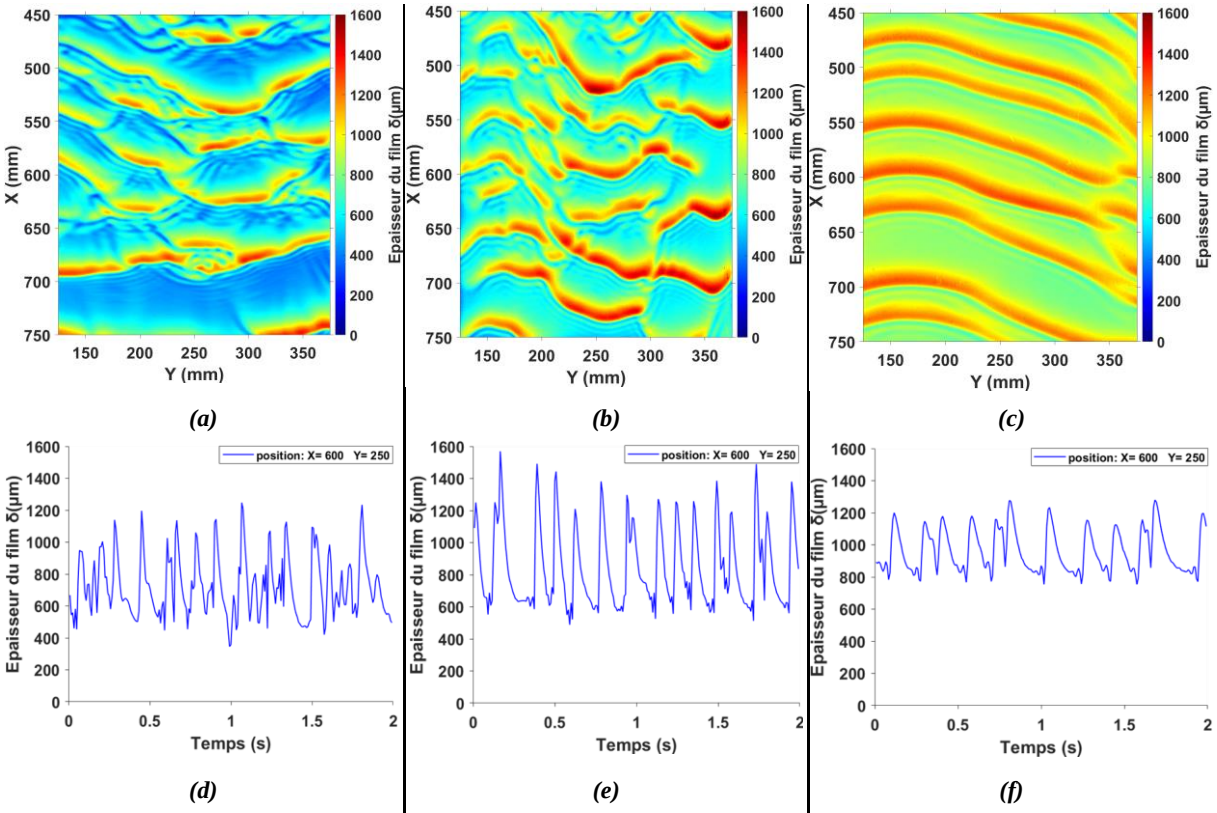
σ = 35 mN/m - Θ=20° Ka = 913 - Re = 190 Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m^3/h	σ = 50 mN/m - Θ=20° Ka = 1927 - Re = 260 Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m^3/h (d)

***Figure IV.1**. Influence de la tension de surface sur la topologie de l'écoulement film liquide pour (a) : W-E1 (b) : W-E2. Variation des profils d'onde dans le temps pour (c) : W-E1 (d) : W-E2.*

Ces images illustrent l'écoulement à un instant *t* mais ne permettent pas d'observer la variation temporelle et spatiale de l'écoulement du film liquide. La variation temporelle au point central (X= 600

- Y = 250) est illustrée dans les **Figures IV.1.c** et **IV.1.d** pour les fluides W-E1 et W-E2 dans les mêmes conditions opératoires. Ces figures montrent l'apparition d'ondes solitaires ayant une amplitude ($\delta \approx$ 650 µm) et une longueur d'onde quasi-constante dans le cas du fluide W-E1. Dans le cas du fluide W-E2, l'écoulement présente a contrario des ondulations liquides ayant des longueurs d'onde et des amplitudes variables. Une interaction entre les ondes à large amplitude et les ondes à faible amplitude est à l'origine de cette structure d'écoulement.

Pour évaluer l'impact de la viscosité sur la morphologie de l'écoulement, les **Figures IV.2.a**, **IV.2.b** et **IV.2.c** présentent une observation de l'écoulement des fluides visqueux W-G1 (μ = 5 mPa.s), W-G2 (μ = 10 mPa.s) et W-G3 (μ = 15 mPa.s) ruisselant sur la plaque plane à θ = 20° et Q_L = 180 L/h.



µ = 5 mPa.s - Θ=20° Ka = 552 - Re = 90 Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m³/h	***µ = 10 mPa.s - Θ=20° Ka = 217 - Re = 45 Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m³/h***	***µ = 15 mPa.s - Θ=20° Ka = 129 - Re = 31 Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m³/h***

Figure IV.2. *Influence de la viscosité sur la topologie de l'écoulement du film liquide pour (a) : W-G1 (b) : W-G2 (c) : W-G3. Variation des profils d'onde dans le temps pour (d) : W-G1 (e) : W-G2 et (f) : W-G3.*

Les **Figures IV.2.a** et **IV.2.b** montrent des trains d'ondes capillaires précédés par des ondulations entièrement développées. Pour le fluide W-G3 (**Figure IV.2.c)**, l'écoulement présente des ondes solitaires à large longueur d'onde et épaisseur élevée ($\delta \approx$ 1350 µm) suivies d'une couche mince non perturbée de film liquide ($\delta \approx$ 850 µm). La variation temporelle au point central (X = 600 mm Y = 250 mm) est illustrée dans les **Figures IV.2.d**, **IV.2.e et IV.2.f** pour les fluides W-G1, W-G2 et W-G3 respectivement dans les mêmes conditions opératoires. Ces images montrent que l'écoulement est

plus stable en augmentant la viscosité. De plus, l'épaisseur du substrat liquide augmente (δ = 500 µm pour W-G1, δ = 600 µm pour W-G2 et δ = 800 µm pour W-G3) en augmentant la viscosité.

Plaque corruguée transversale

Les ondulations de la plaque corruguée transversale ainsi que son angle d'inclinaison peuvent générer des écarts très importants entre les épaisseurs du film au sein de la fenêtre de mesure. Dans certains cas, des gouttelettes liquides peuvent se briser et/ou des ondulations liquides à forte épaisseur (δ > 8000 µm) peuvent être observées. Ces gouttelettes et ces ondulations transportent une quantité importante de liquide ce qui peut provoquer la saturation du capteur de la caméra. Malgré la modification du temps d'exposition et de l'ouverture de l'objectif de la caméra, il n'a pas été possible de quantifier des épaisseurs supérieures à 8000 µm (**Figure III.10.b**). L'étalonnage a été adapté pour quantifier tous les résultats en dessous de 8000 µm. Mais les niveaux de gris représentant les épaisseurs au-dessus de 8000 µm sont non représentatifs et par suite ces zones à grande épaisseur ne sont pas quantifiables. Ces zones ne représentent toutefois que 2% des résultats dans la fenêtre de mesure. Pour pouvoir illustrer les écoulements entre 0 et 8000 µm, l'échelle de couleur est modifiée puisque la plupart des résultats d'épaisseur sont inférieurs à 2000 µm.

Les **Figures IV.3.a** et **IV.3.b** illustrent l'impact de la géométrie de la plaque corruguée transversale et de l'inclinaison θ = 60° sur la structure des écoulements des fluides W-E1 (σ = 35 mN/m) et W-E2 (σ = 50 mN/m). Les résultats montrent une forte perturbation des ondulations liquides avec l'apparition du phénomène de vagues déferlantes. Le phénomène de vagues déferlantes apparait en raison du changement de profondeur abrupt entre chaque ondulation de la plaque. Ces vagues déferlantes sont appelées des déferlantes plongeantes (Chanson et al., 1995) illustrées par des zones rouges foncées dans la fenêtre de mesure. Dans la **Figure IV.3.a**, la fréquence des déferlantes plongeantes est plus élevée en raison de la faible tension de surface (σ = 35 mN/m). Ces déferlantes sont présentes dès la première ondulation de la plaque mais leur fréquence et leur amplitude augmentent avec la distance longitudinale X.

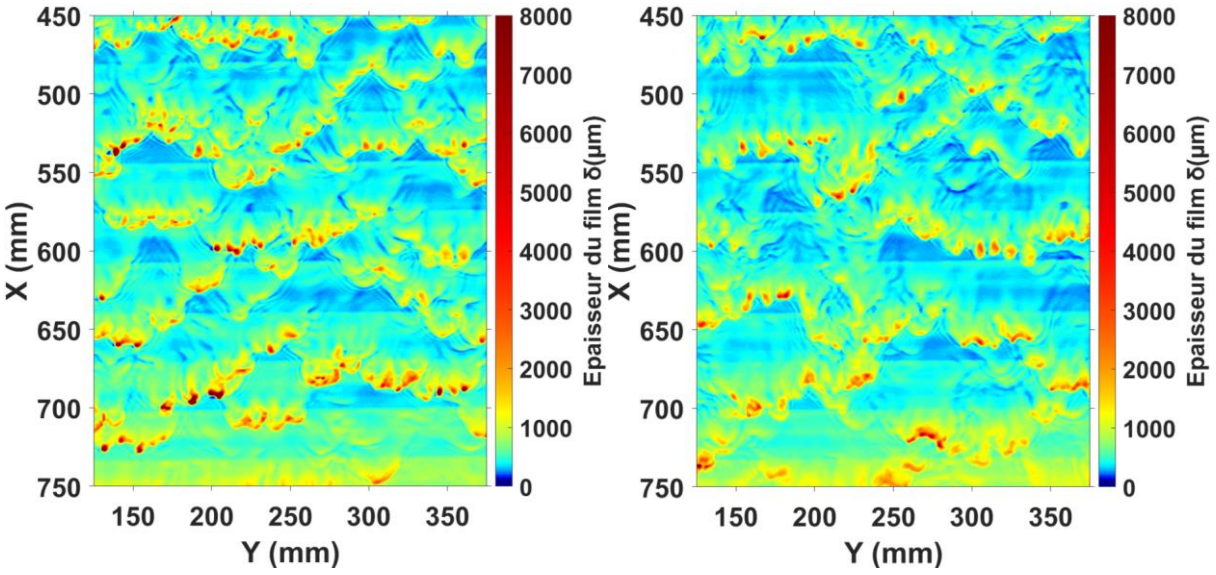


Figure IV.3. *Influence de la tension de surface et de la géométrie de la plaque d'étude sur la topologie de l'écoulement du film liquide pour (a) : W-E1 et (b) : W-E2.*

Cette fréquence est plus élevée dans le cas du fluide W-E1 puisque la diminution de la tension de surface induit des forces intermoléculaires plus faibles et par conséquent une diminution de la cohésion entre les molécules ce qui augmente le phénomène de brisement des gouttelettes liquides dans le cas d'une géométrie corruguée. Ce phénomène a été observé par Deendarlianto et al. (2010) qui ont décrit un arrachement de gouttes sous l'effet de la diminution de la tension de surface, ou encore Singh et al. (2017) qui montrent que la diminution de tension de surface joue un rôle important sur l'arrachement des gouttelettes liquides.

Deendarlianto et al. (2010) indiquent que les vagues déferlantes observées peuvent être à l'origine du phénomène d'engorgement à l'intérieur des colonnes à garnissage structuré ce qui a un impact significatif sur l'efficacité du transfert.

Outre ces phénomènes de vagues déferlantes, des travaux antérieurs de Miyara (1999) ont montré que l'échange est intensifié au niveau de la crête des ondulations liquide ce qui peut amener à une amélioration de la séparation dans la colonne. Plus l'amplitude des crêtes est importante plus les recirculations sont amplifiées.

Les **Figures IV.4.a** et **IV.4.b** montrent que dans le cas d'un écoulement visqueux W-G2 (μ = 10 mPa.s) et W-G3 (μ = 15 mPa.s) sur la plaque corruguée transversale, la fréquence des ondulations liquides et des déferlantes diminue avec l'augmentation de la viscosité. La Longueur d'ondes des ondulations principales augmente considérablement avec l'augmentation de la viscosité. Mudawar & Houpt (1993) ont montré que les grandes ondulations liquides peuvent transporter entre 40 et 70% de la masse

totale du liquide durant son écoulement. Les figures montrent aussi que dans les zones d'écoulement en film mince sans ondulation, les surfaces libres liquides présentent des ondulations spatiales en phase avec les corrugations de la plaque d'étude. Zeng et al. (2022) ont montré que l'épaisseur du film liquide ruisselant sur une géométrie corruguée avec une inclinaison de 90° (verticale), présente des épaisseurs maximales au niveau des creux et des crêtes des corrugations de la plaque. Ce résultat est également observé sur les **Figures IV.4.a** et **IV.4.b** dans les zones qui ne présentent pas de vagues.

La **Figure IV.4.b** montre qu'en augmentant la viscosité, les ondulations liquides principales ayant une longueur d'onde élevée se propagent sur toute la largeur transversale sans rupture.

Dans les applications industrielles, l'augmentation de l'épaisseur du film liquide liée à la viscosité entraine une diminution de la section de passage du gaz entre les tôles des garnissages dans les colonnes ce qui peut provoquer l'engorgement de la colonne (Janzen et al., 2013b).

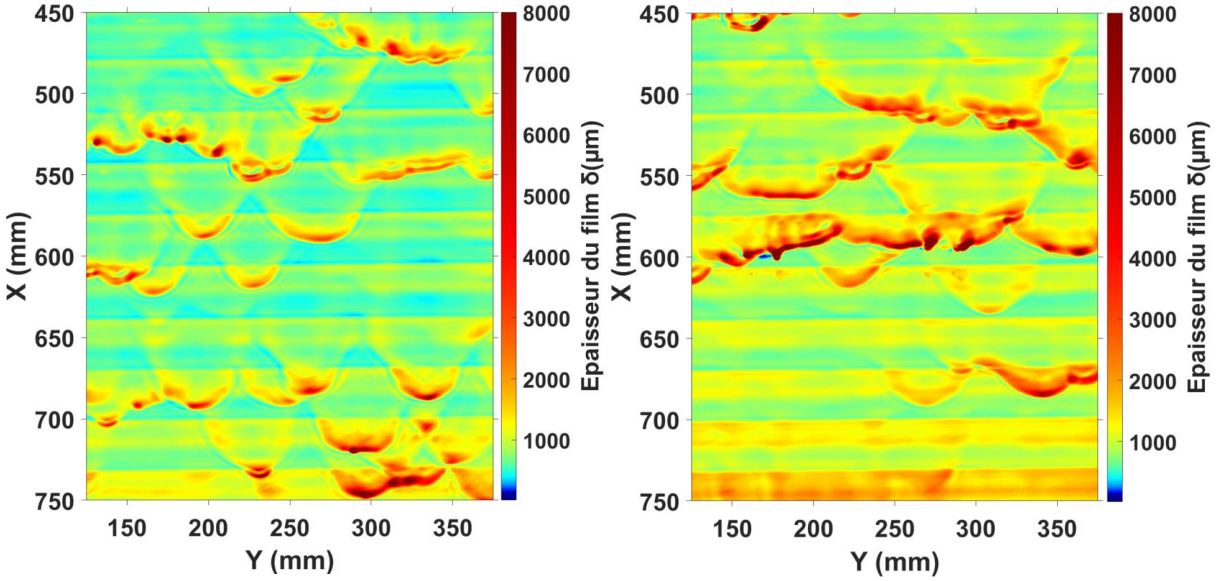


Figure IV.4. *Influence de la viscosité et de la géométrie de la plaque d'étude sur la topologie de l'écoulement film liquide pour*
(a) : W-G2 et (b) : W-G3.

IV.1.2 Distribution axiale de l'épaisseur du film liquide

Plaque plane

Dans cette partie, la distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film liquide dans les trois lignes d'étude (**Figure III.14.a**) est présentée et comparée pour les différents fluides sur la plaque plane. Cette

illustration permet de comprendre l'évolution des ondulations liquides en fonction de la distance longitudinale X.

Les **Figures IV.5.a** et **IV.5.b** présentent les distributions instantanées de l'épaisseur locale dans les trois lignes choisies (cf. section III.6.1) pour les fluides W-E1 et W-E2. Ces figures montrent que dans le cas du fluide W-E1, les vagues solitaires sont suivies par quelques ondes capillaires et puis par une couche mince de liquide non perturbé. Dans le cas du fluide W-E2 illustré dans la **Figure IV.5.b**, le film mince non perturbé est remplacé par des ondes capillaires à fréquence élevée. Des profils d'ondes similaires à celles présentés dans la **Figure IV.5.a** sont décrits dans les travaux de Liu & Gollub (1994). Les ondes sinusoïdales initialement formées à l'entrée ainsi que les ondes capillaires se propagent le long de la distance longitudinale X jusqu'à atteindre un état stationnaire. Dans le cas du fluide W-E2 (**Figure IV.5.b**) on remarque la présence d'ondes à longueur d'ondes plus importante ce qui représente les ondes en 3D pleinement développées. Ceci est le résultat de l'interaction entre des ondes d'amplitude élevée et les plus petites ondulations liquides. Les ondes à amplitude élevée croissent et s'accélèrent progressivement en se déplaçant le long de la plaque en raison de l'absorption des ondulations plus petites.

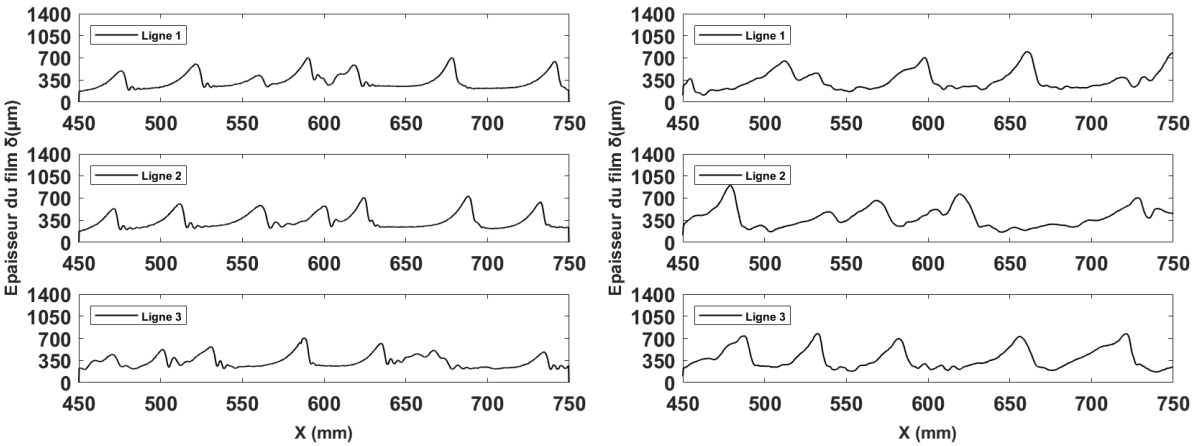
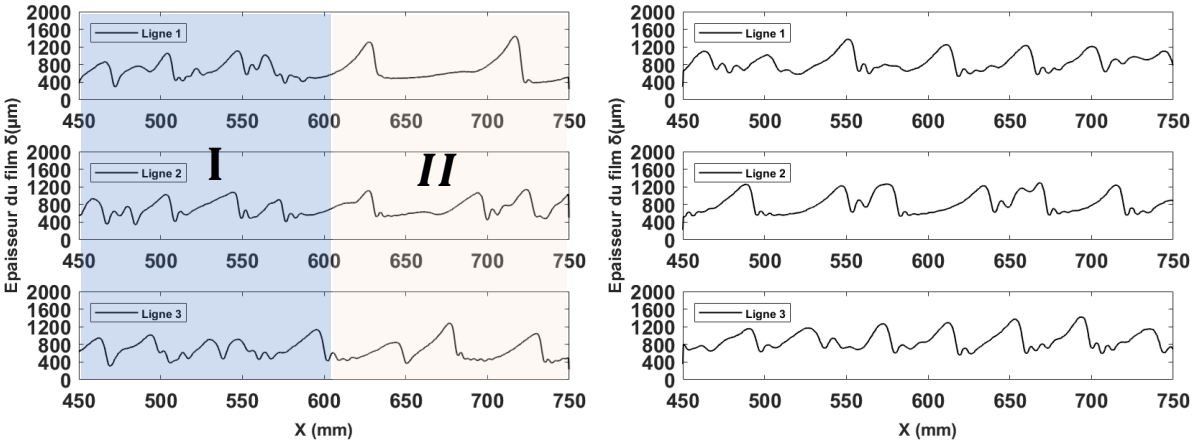


Figure IV.5. *Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film pour (a) : W-E1 et (b) : W-E2.*

Les **Figures IV.6.a**, **IV.6.b** et **IV.6.c** montrent l'évolution axiale instantanée de l'épaisseur du film pour les fluides visqueux W-G1, W-G2 et W-G3. Comme discuté dans la section IV.1.1, l'épaisseur du film augmente au niveau du substrat liquide quand la viscosité augmente. La **Figure IV.6.a** est divisée en deux régions, la région I entre 450 et 600 mm et la région II entre 600 et 750 mm. Dans la région I, les ondes primaires ne sont pas pleinement développées avec des crêtes déformées alors que dans la région II, les ondes sont pleinement développées et séparées par un film mince non perturbé avec la présence de quelques ondes capillaires.

En augmentant la viscosité du film liquide, l'instabilité est réduite et les ondes pleinement développées apparaissent dans la région I et II toujours en présence d'ondes capillaires. En atteignant la viscosité la plus élevée (**Figure IV.6.c**) des ondes solitaires ayant une amplitude et une longueur d'onde élevée se forment avec la présence d'une seule onde capillaire après chaque onde solitaire. Les ondes solitaires sont séparées par un film liquide d'épaisseur élevée et sans perturbation. La distance séparant les ondes solitaires augmente avec la distance en aval X.

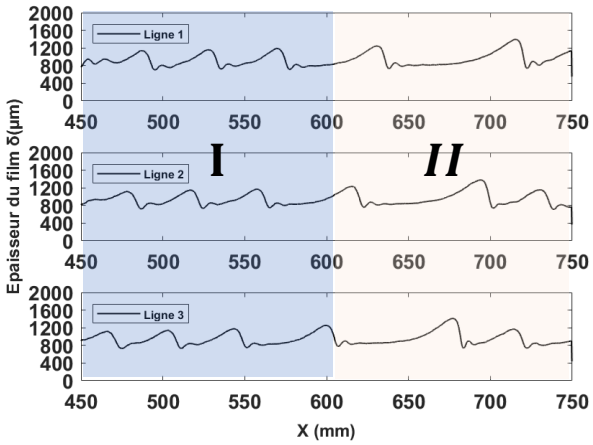


µ = 5 mPa.s - Θ=20°
Ka = 552 - Re = 90
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m^3/h

(a)

µ = 10 mPa.s - Θ=20°
Ka = 217 - Re = 45
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m^3/h

(b)



µ = 15 mPa.s - Θ=20°
Ka = 129 - Re = 31
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m^3/h

(c)

Figure IV.6. *Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film pour (a) : W-G1, (b) : W-G2 et (c) : W-G3.*

En augmentant la viscosité, les ondes capillaires sont atténuées et l'épaisseur du film augmente significativement au niveau du substrat liquide. Il est également important de noter que l'amplitude des ondes solitaires est réduite en raison de l'augmentation de la viscosité alors que la longueur d'onde augmente. Les travaux de Miyara (1999) ont montré que les recirculations liquides s'amplifient au niveau des ondulations liquides ayant une amplitude élevée et se réduisent au niveau des ondes

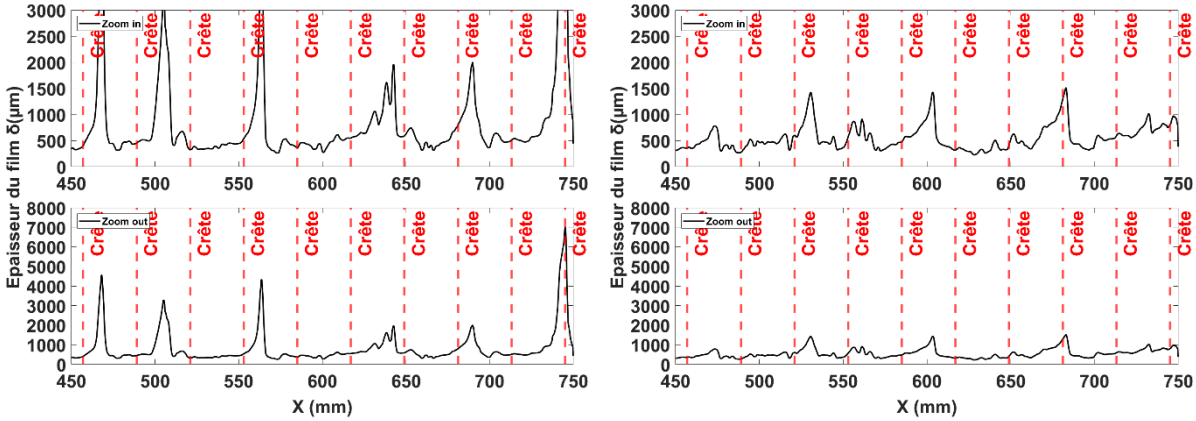
capillaires. Comme mentionnée dans la section I.2, ces recirculations améliorent les performances de transfert dans les colonnes à garnissage. En revanche, une augmentation importante de l'épaisseur du film liquide au niveau du substrat peut entraîner un engorgement précoce de la colonne. Dans ce cas, l'origine de l'engorgement est la diminution de la section de passage du gaz.

Plaque corruguée transversale

Pour étudier l'effet des corrugations de la plaque corruguée transversale sur la formation des ondulations liquides et l'apparition du phénomène de vagues déferlantes, deux observations de la distribution axiale instantanée au niveau de la ligne 2 sont réalisées :

- Une observation zoomée (Zoom in) entre 0 et 3000 µm.
- Une observation plus globale (Zoom out) entre 0 et 8000 µm qui représente la limite de calibration.

Les **Figures IV.7.a** et **IV.7.b** illustrent les deux représentations pour les fluides W-E1 et W-E2 dans les mêmes conditions opératoires que les **Figures IV.3.a** et **IV.3.b**. La **Figure IV.7.a** (fluide W-E1) montre l'apparition des pics à épaisseur importante et à faible longueur d'onde. Cela peut s'expliquer par le fait que lorsqu'une vague arrive avec une rétention suffisante de liquide, elle entre en choc avec les pentes positives (**Figure III.14.b**) des corrugations de la plaque. Ce choc provoque l'initiation du phénomène des vagues déferlantes et l'arrachement de gouttelettes liquides au niveau de l'écoulement du fluide à basse tension de surface (pics de la **Figure IV.7.a**). Les résultats obtenus montrent que l'impact de la diminution de la tension de surface sur le substrat liquide est modéré.



σ = 35 mN/m - Θ=60°
Ka = 670 - Re = 190
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m³/h

(a)

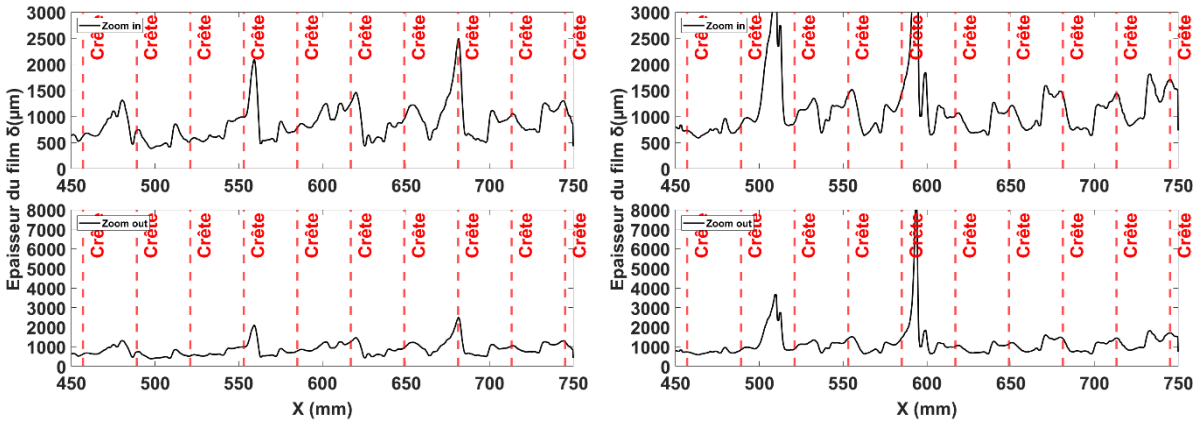
σ = 50 mN/m - Θ=60°
Ka = 1414 - Re = 260
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m³/h

(b)

Figure IV.7. *Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film pour (a) : W-E1 et (b) : W-E2.*

Pour les fluides visqueux, les **Figures IV.8.a** et **IV.8.b** montrent une augmentation de l'épaisseur du substrat liquide avec l'augmentation de la viscosité ainsi qu'une diminution importante de la fréquence des ondes déferlantes. Les déferlements liquides observés dans les **Figures IV.3.a** et **IV.3.b** sont

remplacés par des ondes principales qui sont illustrées dans les **Figures IV.4.a** et **IV.4.b**. La fréquence de ces ondes ayant une large longueur d'onde diminue avec l'augmentation de la viscosité.



μ = 10 mPa.s - Θ=60°
Ka = 159 - Re = 45
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m³/h

(a)

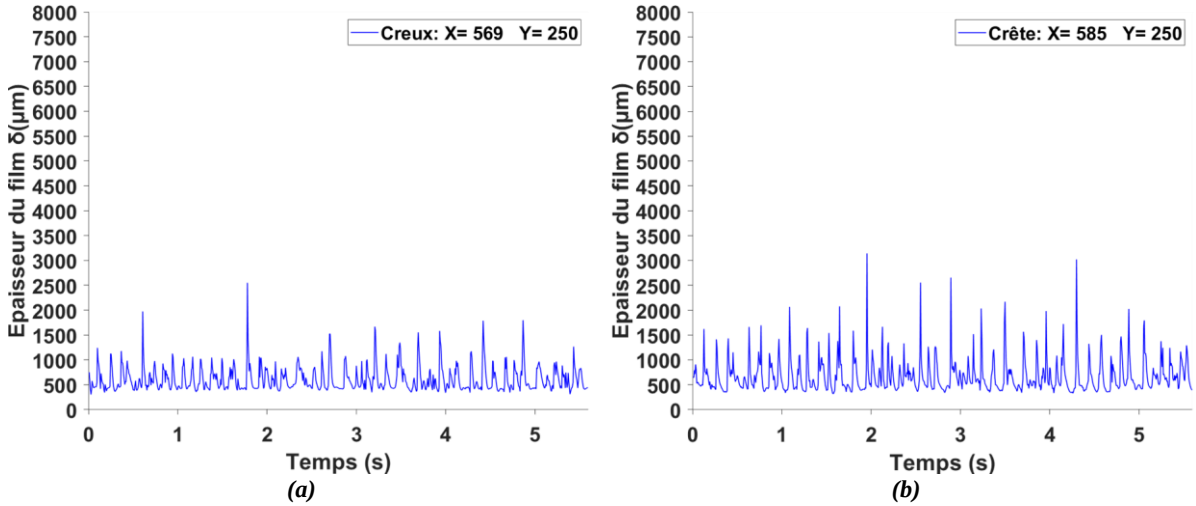
μ = 15 mPa.s - Θ=60°
Ka = 94 - Re = 31
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m³/h

(b)

Figure IV.8. *Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film pour (a) : W-G2 et (b) : W-G3.*

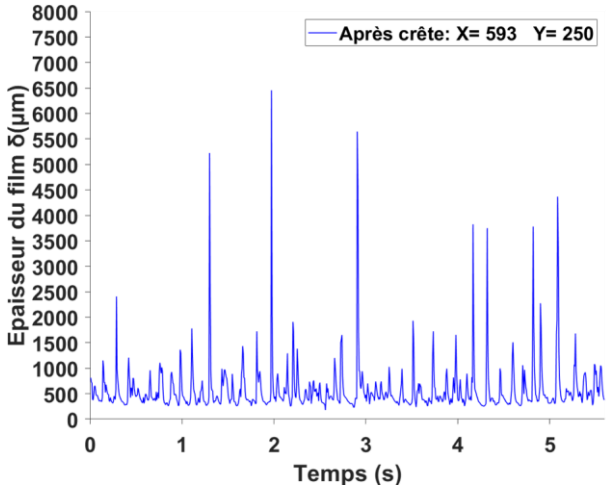
IV.1.3 Variation temporelle de l'épaisseur du film sur la plaque corruguée transversale : creux, crête et après la crête

La distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film évoquée dans la partie précédente est importante afin de comprendre la dynamique de l'écoulement et les phénomènes observés sur l'ensemble de la fenêtre de mesure. En revanche, ce type d'analyse axiale ne permet pas de comprendre l'origine des phénomènes de vagues déferlantes rencontrés et le lien avec la géométrie de la plaque corruguée. Pour cela, le même type de graphes est utilisé (**Figures IV.7** et **IV.8**) mais des variations spatio-temporelles de l'épaisseur du film sont prises en compte. Ne pouvant pas insérer une animation dans ce manuscrit, les **Figures IV.9.a, IV.9.b** et **IV.9.c** donnent l'évolution temporelle de l'épaisseur dans différentes zones des corrugations de la plaque d'étude.



(a)

(b)



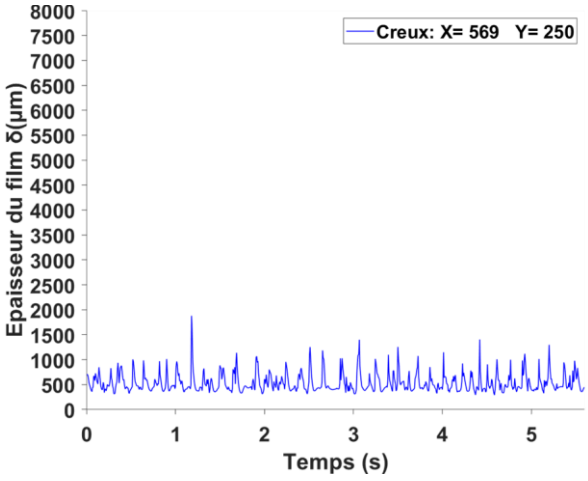
(c)

$\sigma = 35\ mN/m$ - $\Theta = 60°$
$Ka = 670$ - $Re = 190$
$Q_L = 180\ L/h$ - $Q_G = 0\ m^3/h$

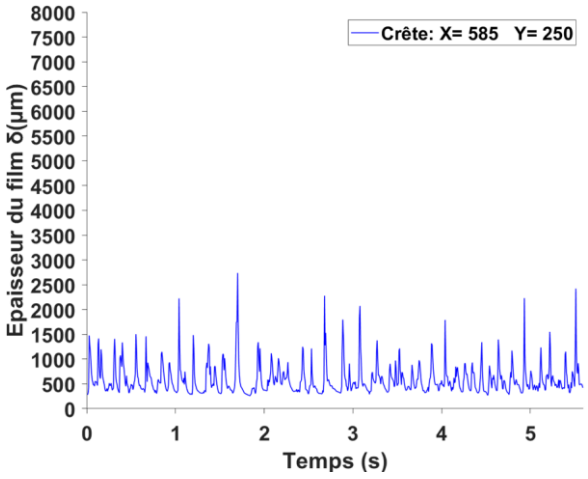
Figure IV.9. *Variation des profils d'onde dans le temps pour le fluide W-E1 au niveau du (a) : creux (b) : crête et (f) : après-crête.*

La corrugation située à X = 585 mm et Y = 250 mm est retenue pour analyser les variations d'épaisseur au niveau du creux situé en amont (X = 569 mm et Y = 250 mm), de la crête (X = 585 mm et Y = 250 mm) et du point appelée « **après crête** » situé à mi-distance entre la crête et le creux (X = 593 mm et Y = 250 mm). Une séquence de 840 images avec une fréquence d''acquisition de 150 Hz est utilisée. La position des différents points étudiés est illustrée dans la **Figure III.14.b**.

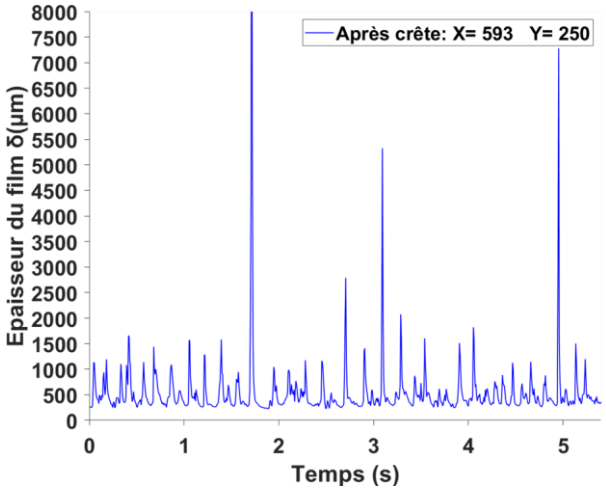
Ce type d'analyse permet de comprendre l'effet des pentes de la corrugation sur l'initiation du phénomène de vagues déferlantes et sur l'épaisseur du film liquide. De plus, ce type d'analyse permet d'estimer l'épaisseur minimale dans chaque zone étudiée ainsi que la fréquence des ondulations liquides.



(a)



(b)



(c)

σ = 50 mN/m - Θ=60°
Ka = 1414 - Re = 260
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m^3/h

Figure IV.10. *Variation des profils d'onde dans le temps pour le fluide W-E2 au niveau du (a) : creux (b) : crête et (c) : après-crête.*

Les **Figures IV.9** et **IV.10** montrent l'évolution de l'épaisseur du film liquide en fonction du temps dans les trois zones pour les fluides W-E1 et W-E2. Partant dans les deux cas de l'évolution de l'épaisseur du film au niveau du creux amont (**Figures IV.9.a** et **IV.10.a**), on remarque l'absence des pics d'amplitude très importante correspondant aux vagues déferlantes. La **Figure IV.9.c** montre l'apparition des pics à large amplitude correspondant au phénomène de vagues déferlantes. L'amplitude de ces pics augmente au niveau de la crête (**Figure IV.9.b**) et cette augmentation s'amplifie dans la zone qui suit la crête. Le phénomène de vagues déferlantes est initialisé suite au choc entre l'onde liquide et la pente positive de la corrugation de la plaque solide et commence à apparaître après ce choc. Ce phénomène s'amplifie dans la zone qui suit la crête à cause de la géométrie de la plaque qui présente des changements de profondeur abrupts.

En comparant l'évolution de l'épaisseur dans les **Figures IV.9.a** et **IV.9.c**, on remarque que l'épaisseur minimale du film est plus importante au niveau du creux (δ_{min} = 310 µm) qu'au niveau de la zone après la crête (δ_{min} = 175 µm). Ce résultat est observé également sur les **Figures IV.10.a** et **IV.10.c** et il est lié à une rétention de liquide plus importante au niveau des creux de la plaque solide. En comparant les résultats des fluides W-E1 et W-E2 dans les **Figures IV.9.c** et **IV.10.c** respectivement, on constate la diminution de la fréquence de ces pics à large amplitude en augmentant la tension de surface ce qui est lié à l'augmentation des forces intermoléculaires au sein du fluide et par suite la diminution de la fréquence d'apparition de ce phénomène de vagues déferlantes.

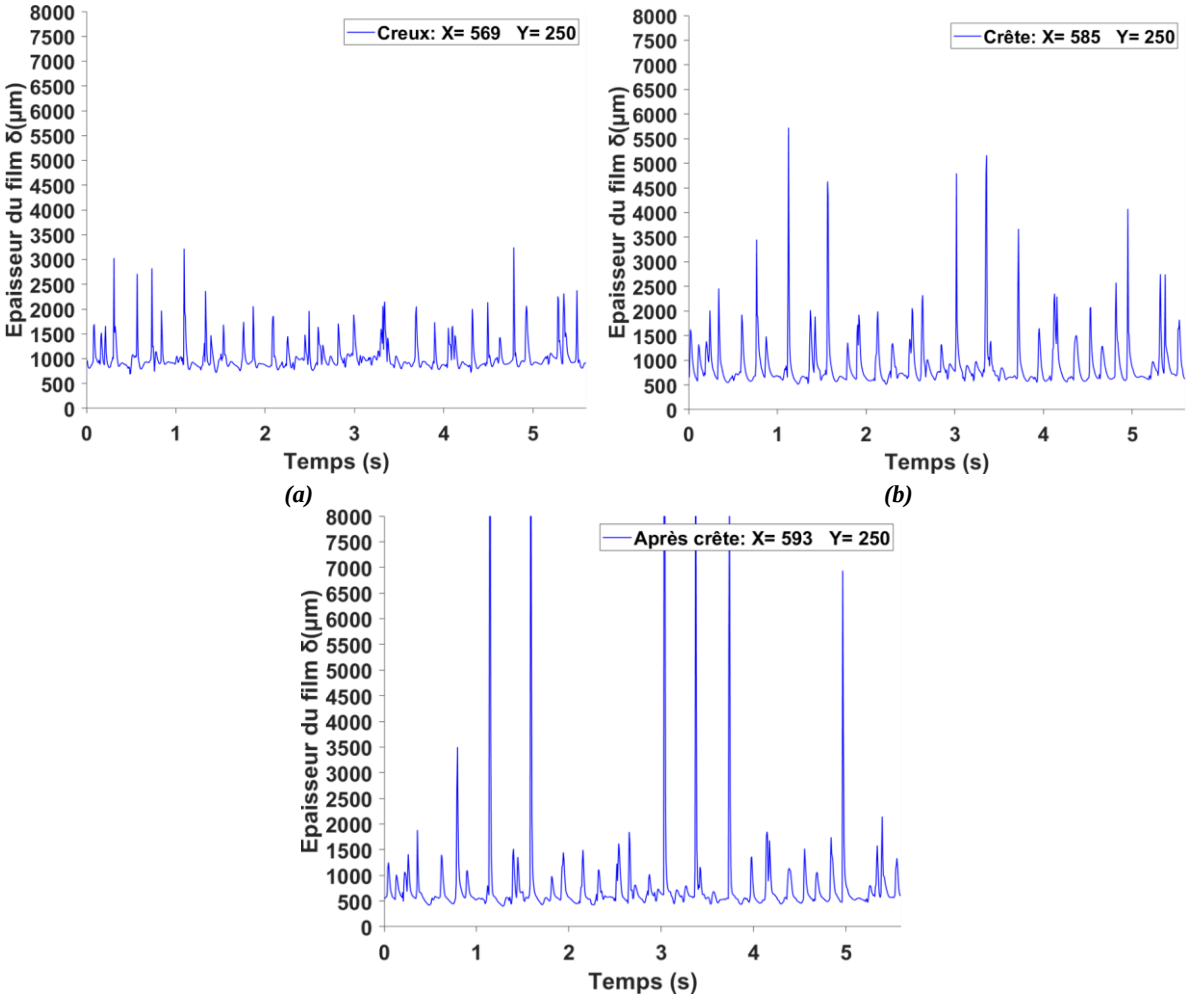


Figure IV.11. *Variation des profils d'onde dans le temps pour le fluide W-G2 au niveau du (a) : creux (b) : crête et (f) : après-crête.*

Les **Figures IV.11** et **IV.12** illustrent les résultats de l'évolution de l'épaisseur du film des fluides visqueux W-G2 et W-G3 dans les trois zones (creux, crête et après la crête). Les résultats observés dans les **Figures IV.11.a** et **IV.11.c** montrent une diminution de l'épaisseur minimale en passant du creux (δ_{min} = 690 µm) vers la zone après la crête (δ_{min} = 400 µm). Le même effet est observé dans la **Figure IV.12** correspondante au fluide W-G3. Cette épaisseur minimale représente l'épaisseur du substrat liquide qui est présente sur toute la surface de la plaque et dont l'épaisseur augmente avec l'augmentation de la viscosité.

En comparant les résultats des fluides W-G2 et W-G3, on constate que la fréquence des ondulations liquides diminue et que la longueur d'onde des vagues augmente avec l'augmentation de la viscosité. Le phénomène de vagues déferlantes est amorti en augmentant la viscosité du fluide puisque la fréquence des ondulations liquides principales qui sont à l'origine de ce phénomène diminue avec l'augmentation de la viscosité du film liquide (**Figure IV.4.b).**

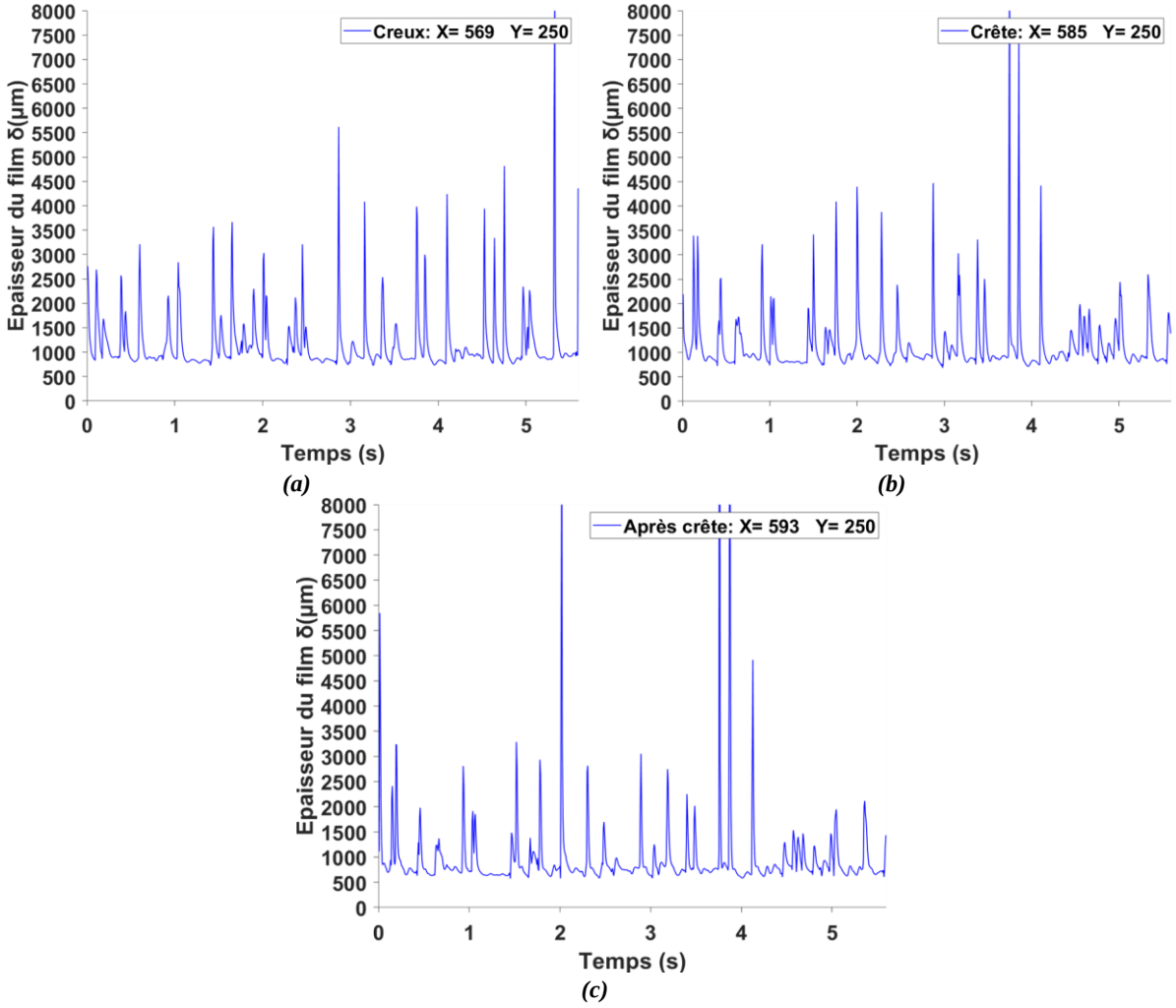


Figure IV.12. *Variation des profils d'onde dans le temps pour le fluide W-G3 au niveau du (a) : creux (b) : crête et (f) : après-crête.*

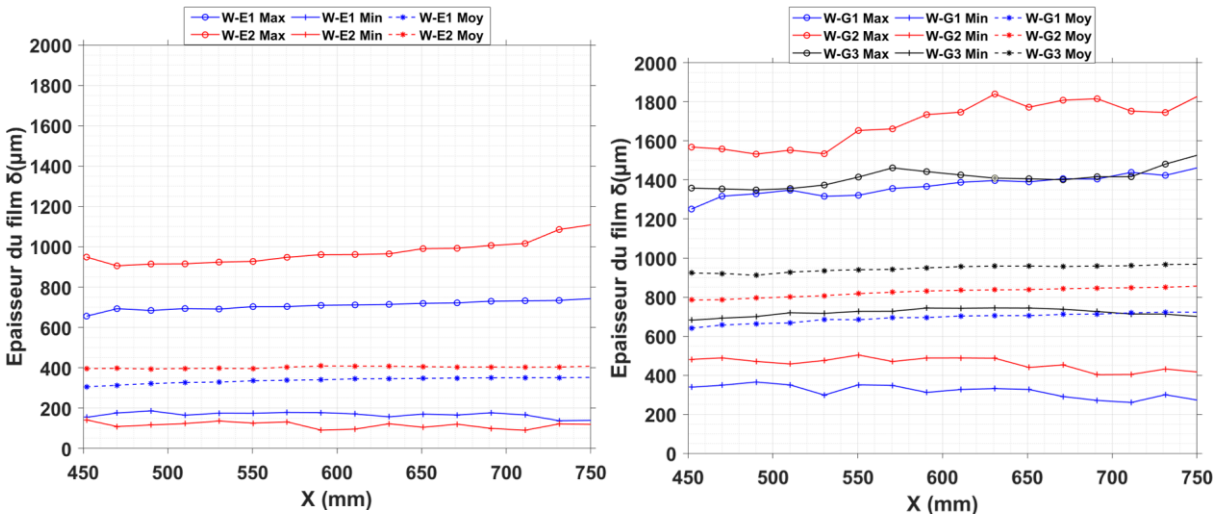
IV.1.4 Evolution axiale de l'épaisseur maximale, minimale et moyenne sur la plaque plane

Dans cette partie, seules les valeurs de l'épaisseur maximale δ_{max}, minimale δ_{min} et moyenne δ_{moy} sur la plaque plane sont présentées. L'analyse des valeurs extrêmes d'épaisseur du film sur la plaque corruguée transversale n'est pas représentative : des déferlements et des gouttelettes liquides provoquent une saturation du capteur c'est-à-dire une surestimation des valeurs extrêmes (cf. sections IV.1.1 et IV.1.2).

Les **Figures IV.13.a** et **IV.13.b** montrent la variation axiale de l'épaisseur maximale δ_{max}, minimale δ_{min} et moyenne δ_{moy} des différents fluides dans les mêmes conditions opératoires que celles des **Figures IV.5** et **IV.6** pour la plaque plane.

Dans la **Figure IV.13.a**, δ_{max} augmente légèrement (de 650 µm à 750 µm pour W-E1 et de 950 µm à 1100 µm pour W-E2) et δ_{min} diminue légèrement avec la distance X. La valeur de δ_{moy} est presque constante (350 µm pour W-E1 et 400 µm pour W-E2) tout au long de X ce qui est cohérent avec le fait qu'il n'y a pas de variations significatives de δ_{max} et δ_{min}. Cet effet est dû à la tension de surface qui fait que les ondes apparaissent à une distance plus proche du point d'entrée du liquide (X= 0 mm) et par conséquent se développent plus rapidement jusqu'à atteindre un profil et des épaisseurs constants. Cet effet a été également observé par Drosos et al. (2004). Dans la **Figure IV.13.b**, le taux de croissance de δ_{max} est significativement plus élevé pour les fluides visqueux que pour les fluides à faible tension de surface. La gravité aide à la propagation et au développement des ondes solitaires observées pour les cas visqueux (cf. section IV.1.2) avec la distance X ce qui implique une augmentation de δ_{max} et une diminution de δ_{min}.

La viscosité élevée implique aussi un retard dans le développement des ondes solitaires. Les résultats de δ_{max} montrent une augmentation importante (de 1250 µm à 1450 µm pour W-G1 et de 1550 µm à 1820 µm pour W-G2) selon la distance X dans le cas des fluides visqueux. Ce phénomène a été observé également dans la **Figure IV.6** en comparant le développement et la structure des ondulations liquides dans région I et II. La **Figure IV.13.b** montre que la valeur de δ_{max} de W-G3 est inférieure à celle de W-G2. Ceci est expliqué par le fait que la longueur d'onde des ondulations du fluide W-G3, le plus visqueux, est notablement plus importante que celle des fluides W-G2 et W-G1, et par conséquent l'amplitude diminue. Ce résultat est également observé dans les **Figures IV.2.b** et **IV.2.c**.



Θ=20°
W-E1: Ka = 913 - Re = 190
W-E2: Ka = 1927 - Re = 260
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m³/h

(a)

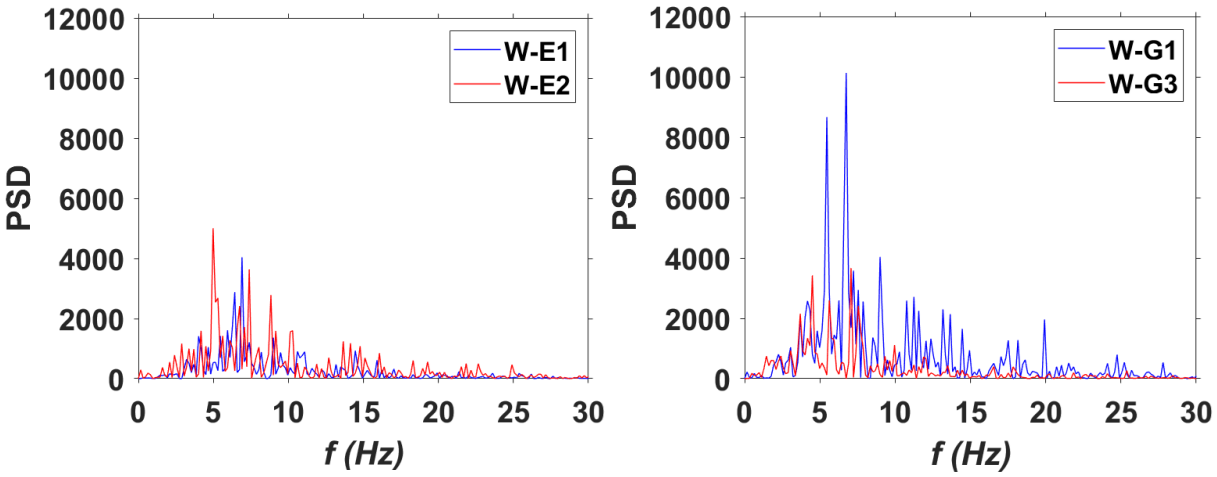
Θ=20°
W-G1: Ka = 552 - Re = 90
W-G2: Ka = 217 - Re = 45
W-G3: Ka = 129 - Re = 31
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m³/h

(b)

Figure IV.13. *Variation axiale de l'épaisseur maximale δ_{max}, minimale δ_{min} et moyenne δ_{moy} pour (a) : W-E1 et W-E2 (b) : W-G1, W-G2 et W-G3.*

IV.1.5 Fréquence des ondes liquides sur la plaque plane

Que ce soit pour les épaisseurs du film liquide ou l'évolution des profils des ondulations liquides sur la plaque plane, il est intéressant d'étudier la distribution fréquentielle. La **Figure IV.14.a** montre les densités spectrales de puissance (PSD) de la fluctuation de l'épaisseur du film pour les différents fluides étudiés dans les mêmes conditions opératoires que l'écoulement présenté dans les **Figures IV.1**. Pour le fluide W-E1, le pic principal situé à f = 7 Hz est associé aux ondulations festonnées illustrées dans la **Figure IV.1.a**. En augmentant la tension de surface, le pic le plus important est légèrement décalé vers la gauche à f = 5 Hz. Cette diminution de la fréquence est liée à la structure de l'écoulement du fluide W-E2 qui présente des ondes en 3D ainsi que des ondes capillaires. Les pics liés à ces ondes capillaires sont présents dans la gamme à 8 < f < 11 Hz. Des pics supplémentaires pour le fluide W-E2 sont observables à des fréquences plus élevées 10 < f < 25 Hz et sont également associés à l'existence d'ondes capillaires supplémentaires mais ayant une plus faible épaisseur.



Θ=20°
W-E1: Ka = 913 - Re = 190
W-E2: Ka = 1927 - Re = 260
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m³/h
(a)

Θ=20°
W-G1: Ka = 552 - Re = 90
W-G3: Ka = 129 - Re = 31
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m³/h
(b)

Figure IV.14. *Densité spectrale de puissance (PSD) de la fluctuation de l'épaisseur du film pour (a) : W-E1 et W-E2 (b) : W-G1 et W-G3.*

Pour le fluide visqueux W-G1, la **Figure IV.14.b** montre deux spectres bleus d'amplitude élevée à f = 6 Hz et f = 7 Hz associés aux ondes primaires observées sur la **Figure IV.2.a.** On note également des pics à des fréquences plus élevées 9 < f < 20 Hz, associés à l'existence d'ondes capillaires. Pour le fluide W-G3, la densité spectrale de puissance est amortie en raison de la plus faible variation de l'épaisseur du film. Un pic est situé à f = 4 Hz et représente les ondes solitaires qui apparaissent sur la **Figure IV.2.c**. Une fréquence élevée d'ondulations capillaires comme celle observée pour les fluides W-E2 et W-G1

peut générer une surface d'échange plus importante ce qui peut intensifier l'échange entre la phase liquide et la phase gaz.

IV.2 Vitesse Interfaciale

IV.2.1 Impact de la tension de surface

Plaque plane

L'objectif de ces travaux de recherche est de comprendre les variations locales de l'épaisseur du film et de la vitesse à l'interface. Pour cela, on s'intéresse aux mesures instantanées qui permettent de relier ces deux grandeurs comme décrit dans la section III.6.4.

Dans les **Figures IV.15.a** et **IV.15.b**, le champ de vitesse instantané à l'interface du film liquide est illustré en utilisant une séquence de 10 images successives de l'écoulement dans des conditions identiques aux **Figures IV.5.a** et **IV.5.b** auxquelles on se réfère pour les épaisseurs de film. Les vitesses locales à l'interface dans la ligne 2 (**Figure III.14.a – ligne 2**) sont extraites.

Les **Figures IV.16.a** et **IV.16.b** donnent les évolutions simultanées de l'épaisseur et de la vitesse à l'interface en fonction de la distance longitudinale X, en utilisant les mêmes images acquises pour les fluides W-E1 et W-E2. Ces résultats montrent une augmentation globale de la vitesse à l'interface en fonction de la distance X dans les deux cas. Cette augmentation est liée à la force de gravité et à l'augmentation de l'épaisseur du film δ. En comparant les résultats des fluides W-E1 et W-E2, on constate que la vitesse à l'interface augmente avec l'augmentation de la tension de surface. Les vagues de petite amplitude ayant une fréquence élevée, elles accumulent de la masse dans le processus de collision et d'absorption amplifié par la gravité. Ces phénomènes favorisent la formation d'ondes ayant une amplitude élevée et qui ont une vitesse plus importante que les petites ondulations liquides (Lu et al., 2016). La formation de ces grandes ondes est à l'origine de l'augmentation globale de la vitesse avec la distance X, sauf dans les régions à film mince non perturbé. Pour les deux résultats illustrés dans les **Figures IV.15.a** et **IV.15.b**, l'interaction entre les ondes complique la détermination d'une relation entre l'épaisseur du film δ et la vitesse interfaciale U_L, surtout dans le cas du fluide W-E2.

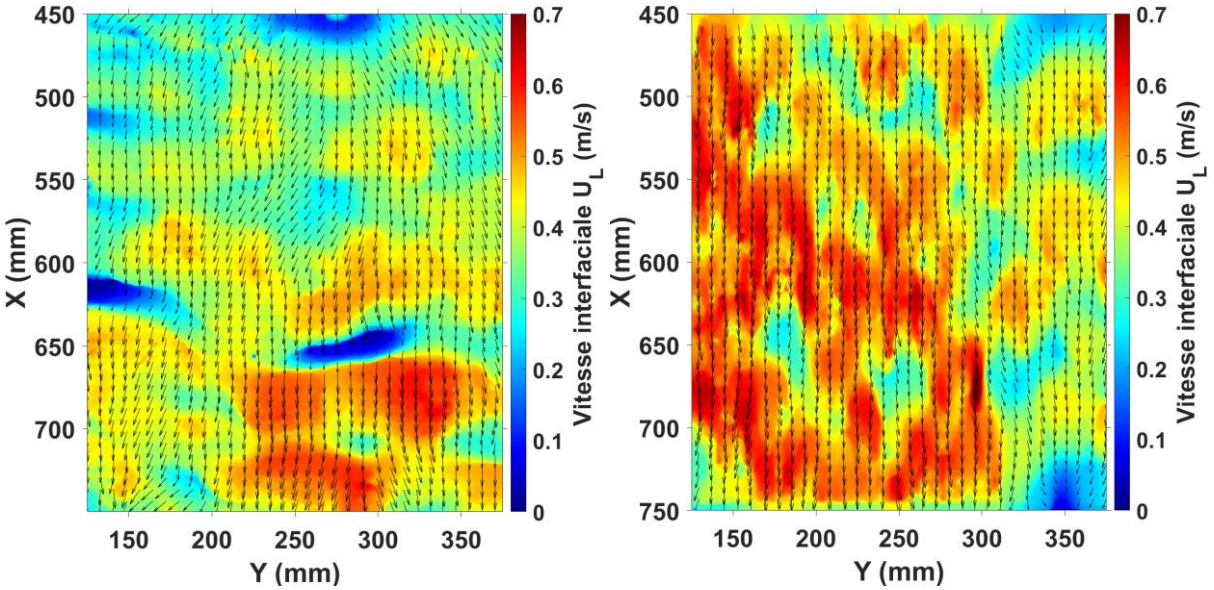


Figure IV.15. *Vitesse interfaciale instantanée pour (a) : W-E1 et (b) : W-E2.*

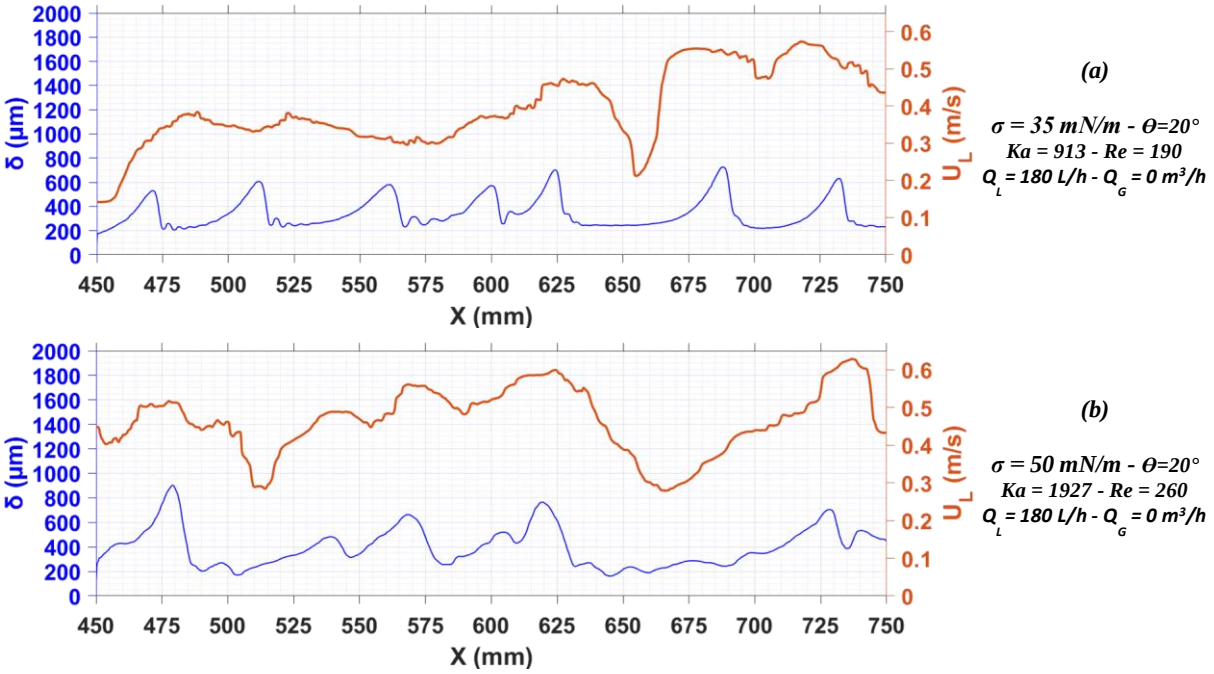


Figure IV.16. *Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film δ et la vitesse interfaciale U_L pour (a) : W-E1 et (b) : W-E2.*

Plaque corruguée transversale

Le même type d'analyse est appliqué sur la plaque corruguée transversale (extraction des résultats de la **ligne 2 - Figure III.14.a**). L'effet de la corrugation sur la vitesse interfaciale est étudié à partir des résultats instantanés.

Les **Figures IV.17.a** et **IV.17.b** donnent respectivement le champ de vitesse et l'épaisseur du film instantanés pour le fluide W-E1. On constate que la vitesse est plus élevée au niveau des ondulations liquides à épaisseur élevée et des déferlements liquides représentés par les zones rouge foncé dans la **Figure IV.17.b**. Ces phénomènes observés dans la structure des écoulements sont dus aux corrugations de la plaque d'étude.

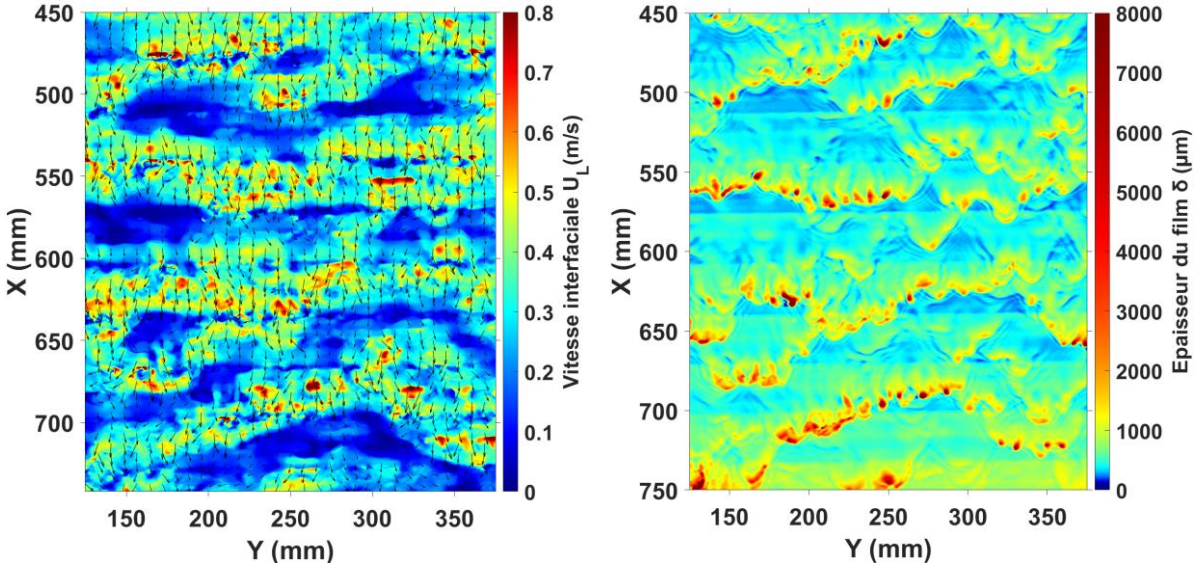


Figure IV.17. *(a) : Epaisseur du film δ et (b) : vitesse interfaciale U_L pour W-E1.*

La **Figure IV.18** montre la distribution de l'épaisseur du film et de la vitesse à l'interface liquide instantanée pour le fluide W-E1 dans la ligne 2 en fonction de la distance X. Les zones en bleu clair représentent les zones d'ondulation liquide à épaisseur importante ou de déferlements. La **Figure IV.18** montre une augmentation de la vitesse dans les zones en bleu clair. La vitesse interfaciale est donc réduite dans les zones où les ondulations liquides présentent une épaisseur plus faible. Ces résultats sont en accord avec les résultats globaux illustrés dans la **Figure IV.17.a**. Contrairement à la plaque plane, la vitesse interfaciale est indépendante de la distance longitudinale X mais dépend uniquement de la structure des ondes liquides et de leur épaisseur qui est en lien avec la géométrie de la plaque (corrugations) comme discuté dans la section IV.1.3.

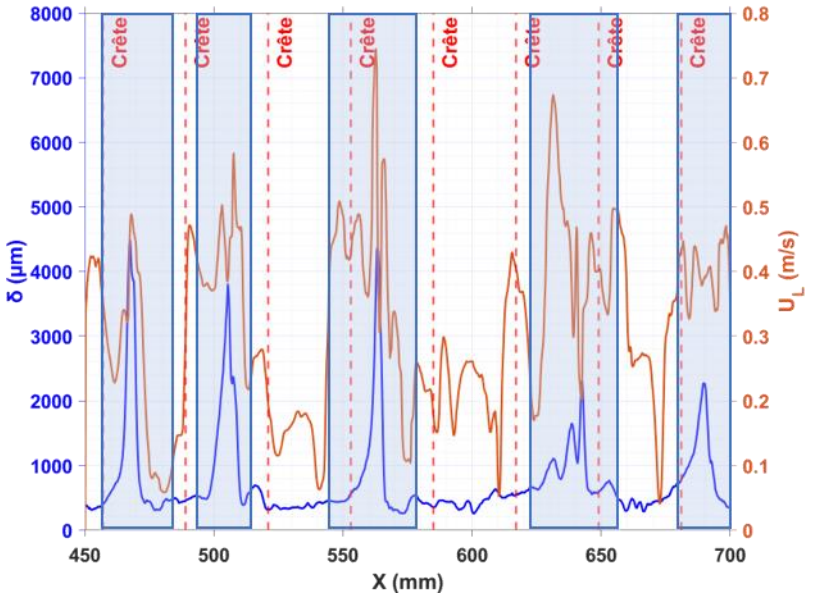
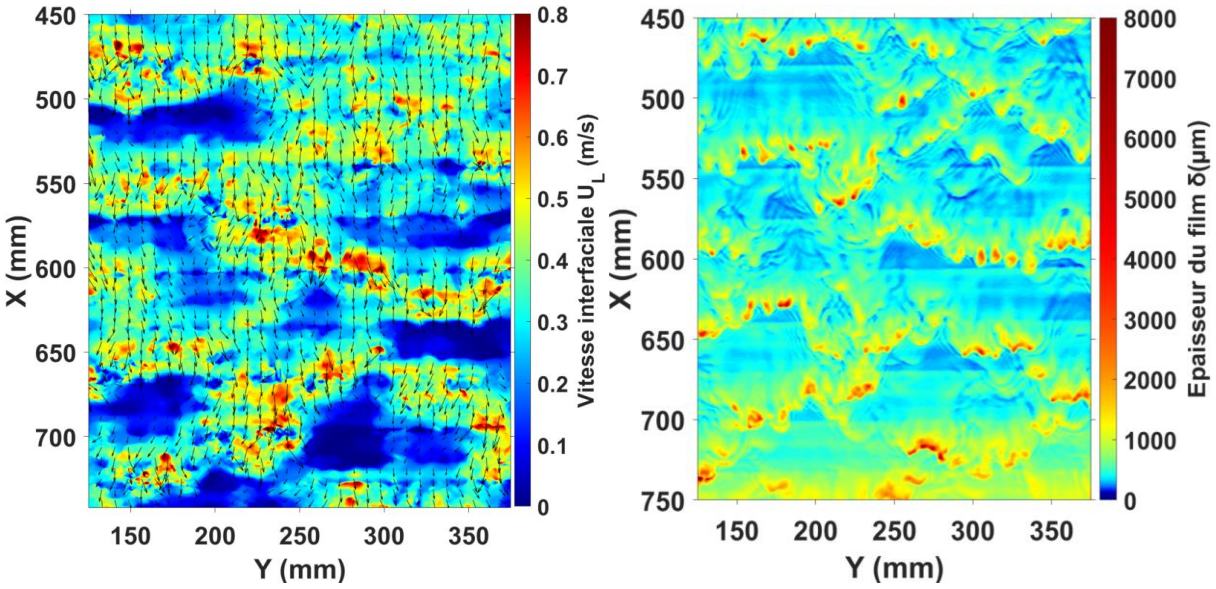


Figure IV.18. *Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film δ et de la vitesse interfaciale U_L pour W-E1 à θ = 60° et Q_L = 180 L/h.*

Afin d'étudier l'impact de la tension de surface sur la vitesse interfaciale, le champ de vitesse est calculé en utilisant une séquence d'images du fluide W-E2. Le résultat du calcul du flot optique est illustré dans la **Figure IV.19.a**. Les **Figures IV.19.a** et **IV.19.b** montrent que les zones où la vitesse interfaciale est la plus importante sont les zones qui correspondent aux ondulations liquides principales ayant une épaisseur importante. Ce constat est similaire à celui fait pour le fluide W-E1 (**Figure IV.18**). En comparant les résultats des fluides W-E1 et W-E2, on remarque que la vitesse interfaciale dans le cas du fluide W-E2 ne présente pas de pics d'amplitude aussi importants que ceux du fluide W-E1 ce qui est lié à l'absence de vagues déferlantes (**Figure IV.20**).

Pour l'illustrer, on constate que la vitesse maximale dans le cas du fluide W-E1, qui correspond à une vague déferlante, est ($U_{L_{max}}$ = 0,74 m/s). Cette valeur est bien supérieure à la vitesse interfaciale maximale observée dans cette même zone en l'absence de vagues déferlantes ($U_{L_{max}}$ = 0,57 m/s) pour le fluide W-E2.

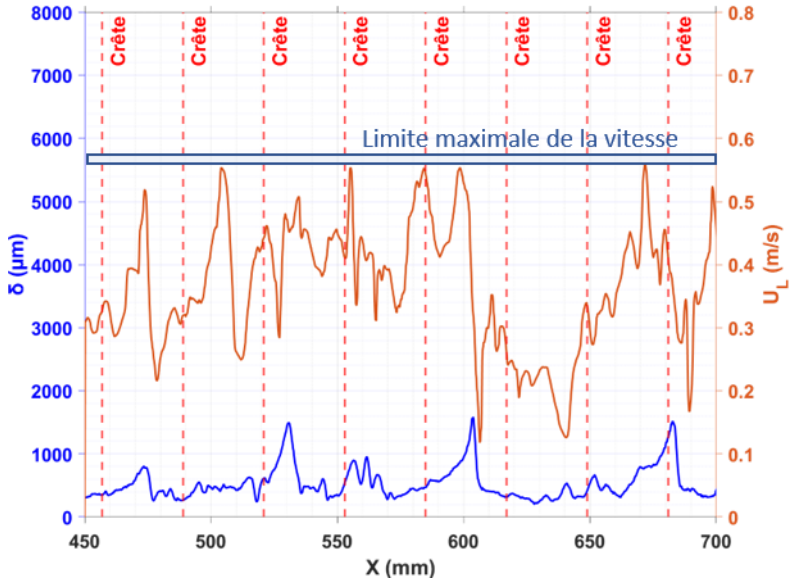


σ = 50 mN/m - Θ=60°
Ka = 1414 - Re = 260
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m^3/h

(a) (b)

Figure IV.19. *(a) : Epaisseur du film δ et (b) : vitesse interfaciale U_L pour W-E2.*

Ce constat est en accord avec les résultats décrits dans la partie précédente qui montrent des pics de vitesse dans les zones qui correspondents aux vagues déférentes et aux ondulations liquides à épaisseur importante et par suite la vitesse interfaciale augmente avec l'augmentation de l'épaisseur du film liquide.



(c)

σ = 50 mN/m - Θ=60°
Ka = 1414 - Re = 260
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m^3/h

Figure IV.20. *Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film δ et de la vitesse interfaciale U_L pour W-E2.*

IV.2.2 Impact de la viscosité

Plaque plane

La même analyse est appliquée pour les séquences d'images des fluides visqueux. La **Figure IV.21.b** montre le champ de vitesse à l'interface du film liquide du fluide W-G3. La variation du champ de vitesse est en phase avec l'épaisseur du film liquide δ. Dans le cas de la **Figure IV.21.a**, il y a moins d'interaction entre les ondulations liquides puisque les ondes solitaires à épaisseur élevée sont formées et sont parfaitement séparées par un film non perturbé. Plus l'écoulement est instable, plus les interactions entre les ondes principales et les ondes plus petites sont importantes, ce qui induit une grande fluctuation du champ de vitesse à l'interface liquide.

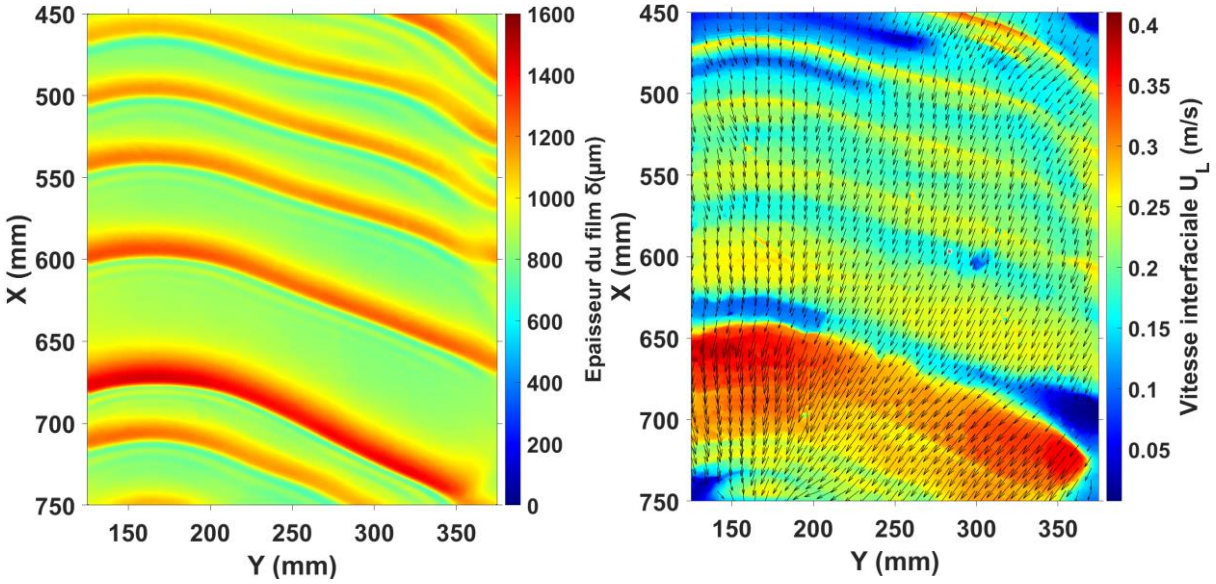


***Figure IV.21**. (a) : Epaisseur du film δ et (b) : vitesse interfaciale U_L pour W-G3.*

La **Figure IV.21.b** montre la vitesse interfaciale sur chaque pixel de la fenêtre de mesure. Ce résultat permet de tirer une conclusion plus claire que précédemment sur la relation entre l'épaisseur du film δ et la vitesse à l'interface du film liquide U_L. La vitesse augmente significativement au niveau de la crête des ondes et diminue au creux du liquide. Les valeurs de vitesse les plus importantes sont situées entre X = 650 mm et X = 725 mm ce qui correspond à la présence de l'ondulation la plus épaisse dans la fenêtre de mesure. Ce constat est également observé dans la **Figure IV.22.b** qui montre la distribution axiale de l'épaisseur du film et la vitesse dans la ligne 2.

La vitesse est plus importante au niveau des ondulations à amplitude élevée qu'au niveau des ondulations à amplitude plus faible. Les **Figures IV.22.a** et **IV.22.b** montrent également que la vitesse interfaciale diminue (de 0,35 m/s pour W-G1 à 0,22 m/s pour W-G3) avec l'augmentation de la

viscosité. Dans le cas du fluide W-G1, la discontinuité observée à X = 650 mm au niveau de la courbe de vitesse U_L correspond à la couche de film mince plat observée sur la courbe d'épaisseur pour 625 < X < 675 mm. Dans cette zone, l'écoulement ne présente pas une variation suffisante de la texture de l'écoulement (niveau de gris) ce qui induit une sous-estimation de la vitesse interfaciale.

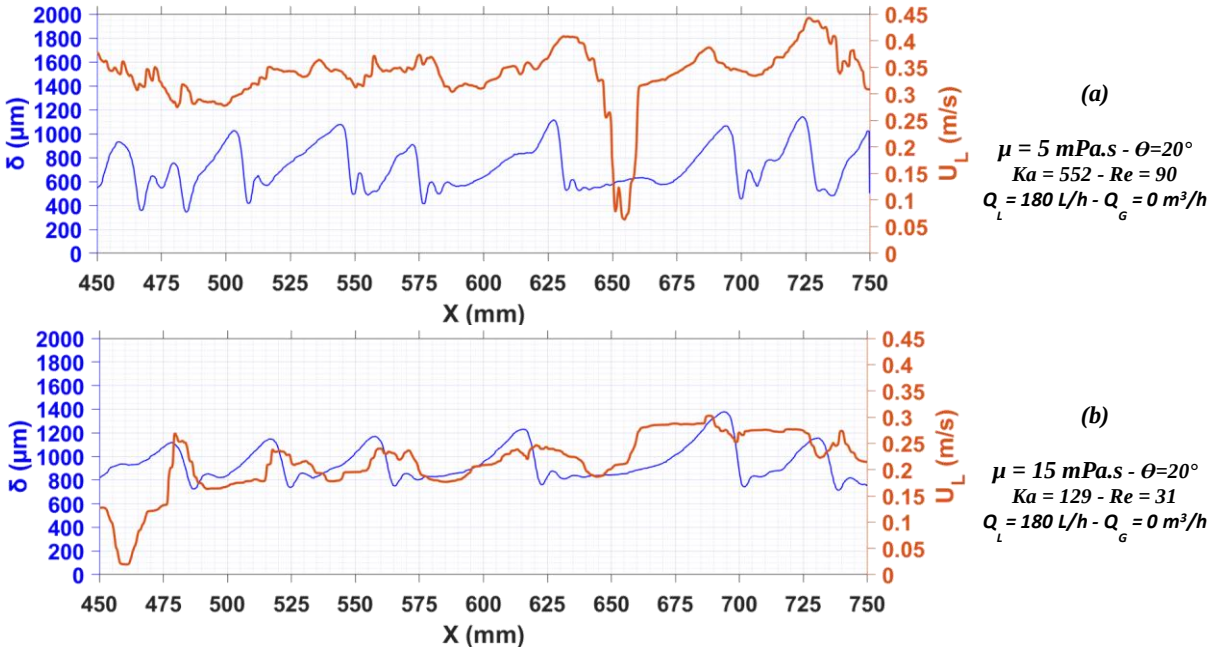
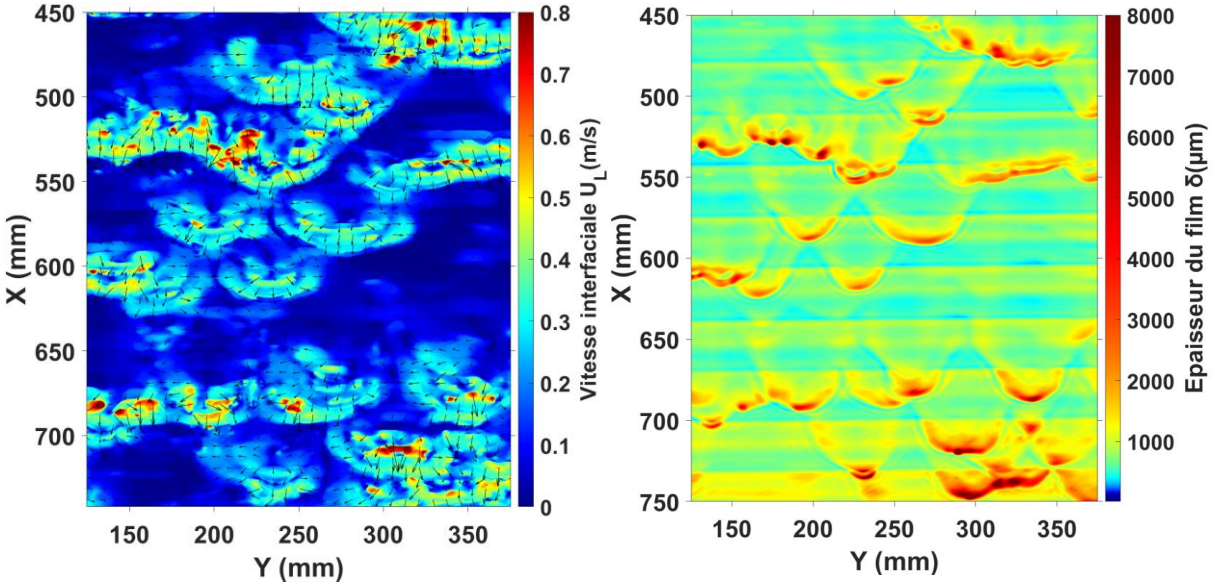


Figure IV.22. *Distribution axiale de l'épaisseur du film δ et de la vitesse interfaciale U_L pour (a) : W-G1 et (b) : W-G3.*

Plaque corruguée transversale

L'influence de la viscosité est étudiée en appliquant le flot optique sur des séquences d'image des fluides visqueux W-G2 et W-G3 (**Figures IV.23** et **IV.24**). L'augmentation de la viscosité implique une diminution de la fréquence des ondes. Cette diminution rend ardue le calcul du champ de vitesse par flot optique. Les zones en absence d'ondulations liquide représentent des zones de film mince liquide à faible épaisseur (δ < 1000 µm) qui se déplacent en phase avec les corrugations de la plaque d'étude. Dans ce type d'écoulement de fluide visqueux, la vitesse interfaciale n'est pas quantifiable dans les zones où l'intensité de fluorescence ne varie pas et par suite la valeur de vitesse est égale à zéro (**Figures IV.23** et **IV.24**). En revanche, il est toujours possible de mesurer la vitesse interfaciale au niveau des ondes principales qui sont présentes mais à faible fréquence.

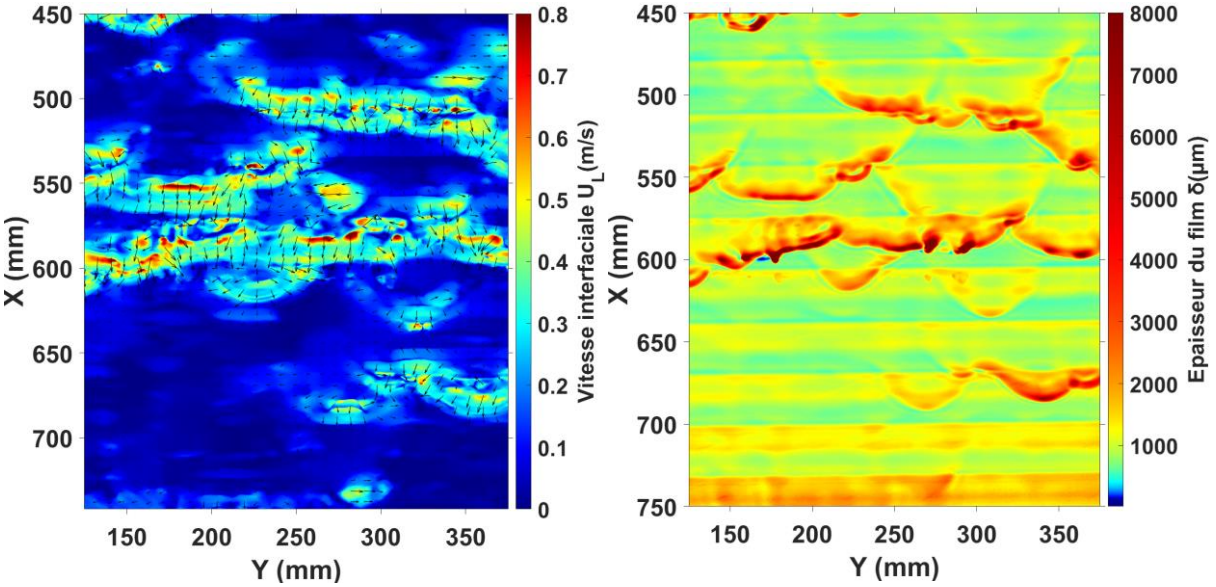
Ces résultats des **Figures IV.24.a** et **IV.24.b** montrent que malgré l'augmentation de la viscosité, la vitesse interfaciale au niveau des ondes principales ou déferlements liquides reste significative ($U_{L_{max}}$ = 0,66 m/s) en comparaison à la vitesse interfaciale maximale mesurée pour le fluide W-G2 ($U_{L_{max}}$ = 0,6 m/s). Ces résultats sont illustrés dans les **Figures IV.25.a** et **IV.25.b** qui montrent que la vitesse interfaciale est élevée au niveau d'ondes déferlantes même dans le cas du fluide visqueux W-G3 mais à plus faible fréquence.



µ = 10 mPa.s - Θ=60°
Ka = 159 - Re = 45
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m^3/h

(a) ***(b)***

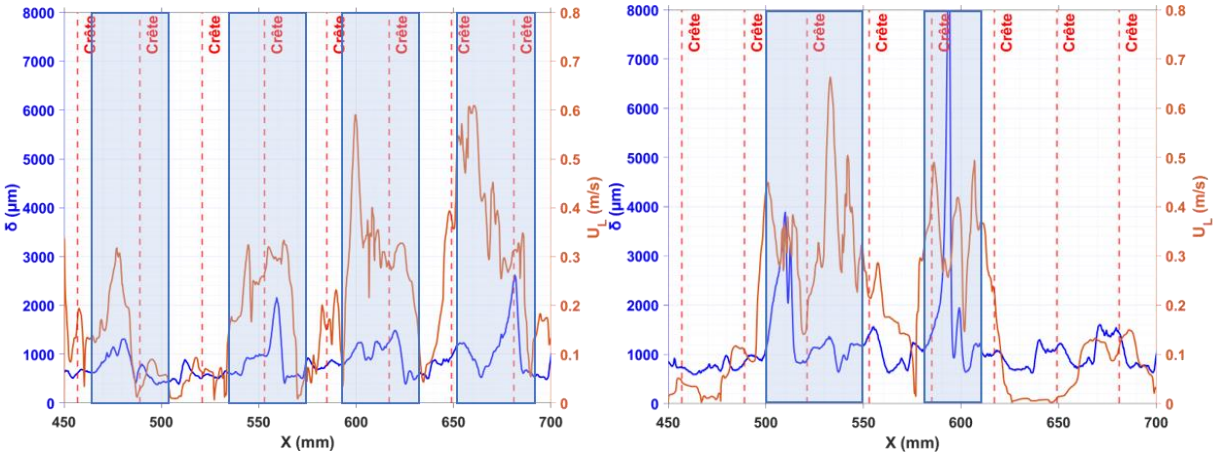
Figure IV.23. *(a) : Epaisseur du film δ et (b) : vitesse interfaciale U_L pour W-G2.*



µ = 15 mPa.s - Θ=60°
Ka = 94 - Re = 31
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m^3/h

(a) ***(b)***

Figure IV.24. *(a) : Epaisseur du film δ et (b) : vitesse interfaciale U_L pour W-G3.*



μ = 10 mPa.s - Θ=60°
Ka = 159 - Re = 45
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m³/h

(a)

μ = 15 mPa.s - Θ=60°
Ka = 94 - Re = 31
Q_L = 180 L/h - Q_G = 0 m³/h

(b)

Figure IV.25. *Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film δ et de la vitesse interfaciale U_L pour (a) : W-G2 et (b) : W-G3.*

IV.3 Impact du contre-courant gaz

IV.3.1 Forme des profils d'ondes

Les colonnes à garnissage structuré mettent en œuvre la circulation d'un flux gazeux à contre-courant avec la phase liquide. Le liquide s'écoule par gravité le long des plaques ondulées tandis que le gaz ascendant est confiné dans la partie vide entre les différentes plaques. Le cisaillement du contre-courant gaz joue un rôle important sur le développement et l'évolution des instabilités de l'écoulement liquide au sein de ces colonnes et par conséquent sur les performances des colonnes ainsi que leur engorgement. Dans le but de se rapprocher des conditions réelles de l'écoulement dans les colonnes à garnissage structuré, l'objectif initial était d'étudier l'influence du contre-courant gaz sur la structure de l'écoulement et la vitesse interfaciale sur les trois plaques d'étude. Cependant, il n'a pas été possible d'établir des conditions d'écoulement représentatifs des débits rencontrés dans les colonnes à garnissage structuré sans engendrer de l'entrainement excessif de liquide avec le gaz ce qui provoque des problèmes d'acquisitions d'images (cf. section III.3). Pour cela, l'étude est limitée uniquement à la plaque plane.

La **Figure IV.26** illustre l'impact du contre-courant gaz pour quatre vitesses de gaz sur le profil de l'écoulement en film mince, pour le fluide W-E2 à θ = 10° et Q_L = 80 L/h. Le cas de référence est le cas sans contre-courant (U_G = 0 m/s) avec la présence d'ondes solitaires précédées d'un train d'ondulations capillaires. L'impact du contre-courant sur le profil de l'écoulement est étudié en augmentant progressivement la vitesse du gaz U_G.

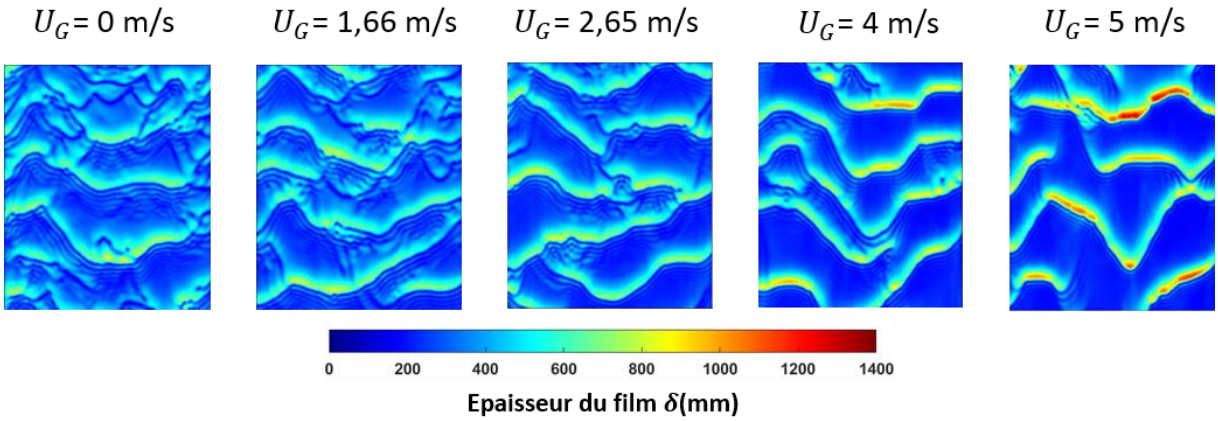


Figure IV.26. *Images de l'épaisseur du film illustrant l'influence du contre-courant gaz pour W-E2 (σ = 50 mN/m) à Θ = 10° et Q_L = 80 L/h.*

Premièrement, la comparaison visuelle entre les différentes figures montre que la distance entre les ondes principales augmente en augmentant la vitesse du gaz à contre-courant. Une vitesse de gaz plus élevée implique un effet de cisaillement plus important entre les deux phases. L'impact du gaz est très modéré à faible vitesse (0 < U_G < 3 m/s) mais devient significatif à partir de U_G = 3 m/s. Des ondes en forme de V apparaissent à U_G élevé avec un large film liquide non perturbé entre ces ondes principales. Comme l'illustre la **Figure IV.26**, l'effet du contre-courant est d'atténuer le train d'ondes capillaires qui est comprimé en ondes d'amplitude élevée. L'épaisseur de l'onde principale augmente alors avec l'augmentation de la vitesse du gaz.

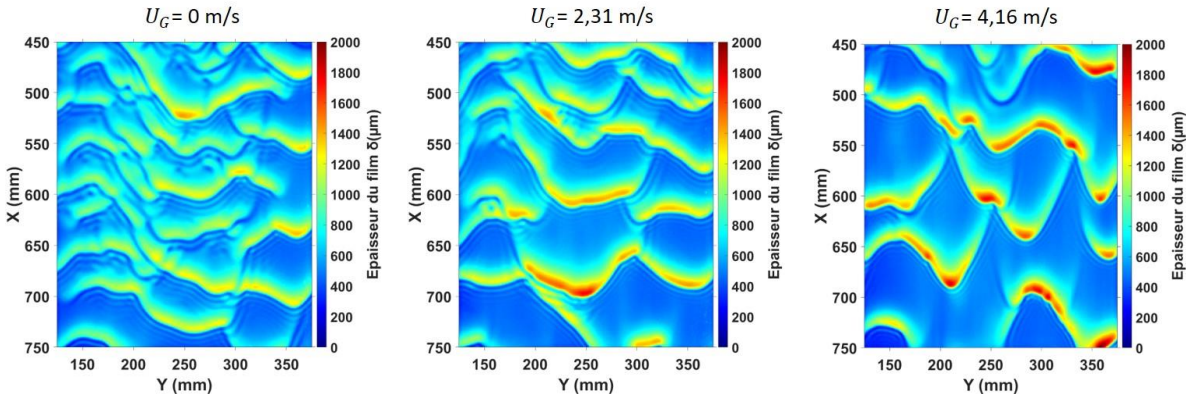


Figure IV.27. *Images de l'épaisseur du film illustrant l'influence du contre-courant gaz pour W-G2 (μ = 10 mPa.s) à Θ = 20° et Q_L = 80 L/h.*

Le même résultat est observé pour les fluides visqueux. La **Figure IV.27** illustre le cas du fluide W-G2 à θ = 20° et Q_L = 80 L/h. Les ondes capillaires sont atténuées et l'amplitude des ondes principales croit significativement lorsque le débit de gaz augmente. Aux vitesses gaz plus élevée (U_G > 5 m/s), il n'a pas été possible d'effectuer des acquisitions d'image puisque l'arrachement des gouttes de liquide commence dans la zone la plus proche de l'entrée liquide, spécifiquement pour le fluide à faible tension de surface (W-E1). Ces gouttes se fixent sur la plaque en verre ce qui engendre un bruit optique

non négligeable au niveau de la fenêtre de mesure. Ce bruit optique induit une erreur dans la quantification de l'épaisseur du film et de la vitesse à l'interface.

IV.3.2 Vitesse interfaciale des ondulations cisaillées par le gaz

La **Figure IV.28** montre l'évolution de δ_{max} et de la vitesse d'onde correspondante en fonction de U_G pour le cas présenté dans la **Figure IV.26**.

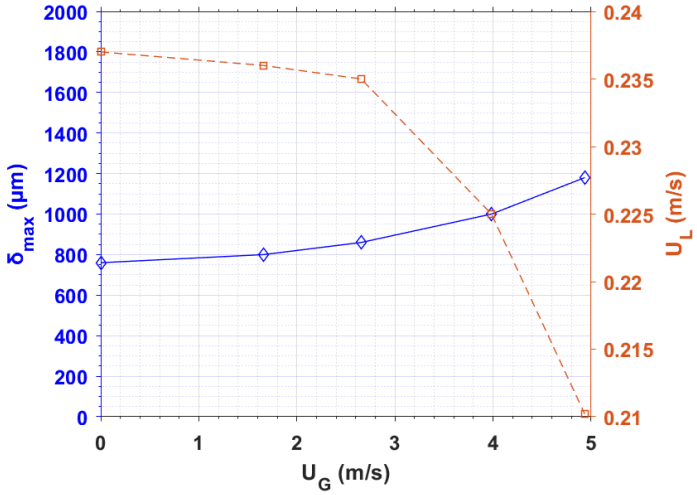


Figure IV.28. *Variation de l'épaisseur maximale δ_{max} et de la vitesse interfaciale correspondante U_L vs. La vitesse du contre-courant gaz U_G pour W-E2(σ = 50 mN/m) à Θ = 10° et Q_L = 80L/h.*

L'amplitude des ondes principales et leur vitesse interfaciale sont peu impactées par le gaz ayant une faible vitesse (U_G = 1,66 m/s et U_G = 2,65 m/s). Au-delà de 3 m/s, l'épaisseur maximale δ_{max} et la vitesse interfaciale U_L sont fortement impactées. L'épaisseur maximale augmente significativement et la vitesse interfaciale diminue en raison du cisaillement du gaz à contre-courant. Ce résultat a été également observé pour l'ensemble des fluides d'étude.

IV.3.3 Fréquence des ondulations liquides

Pour mieux comprendre la structure de l'écoulement, il est intéressant d'analyser l'évolution des résultats d'épaisseur et les spectres de Fourrier correspondant. Les résultats d'épaisseur du fluide W-G2 sont utilisés pour analyser les profils d'onde.

La **Figure IV.29** illustre la présence des pics à 4 < f < 8 Hz pour le cas du fluide W-G2 non cisaillé par un contre-courant gaz. Ces pics correspondent aux ondes capillaires et ondes principales qui sont présentes dans la **Figure IV.27** à U_G = 0 m/s. Ces ondes sont atténuées par la présence du contre-courant gaz et sont remplacées par des ondes principales représentées par deux larges pics (f = 4 et 5 Hz) décalés et resserrés par rapport aux pics des ondes capillaires du fluide non cisaillé par le gaz. Ces deux pics représentent les ondes principales ayant une amplitude élevée qui sont le résultat de la compression des ondes capillaires en ondes principales à cause de la présence du gaz.

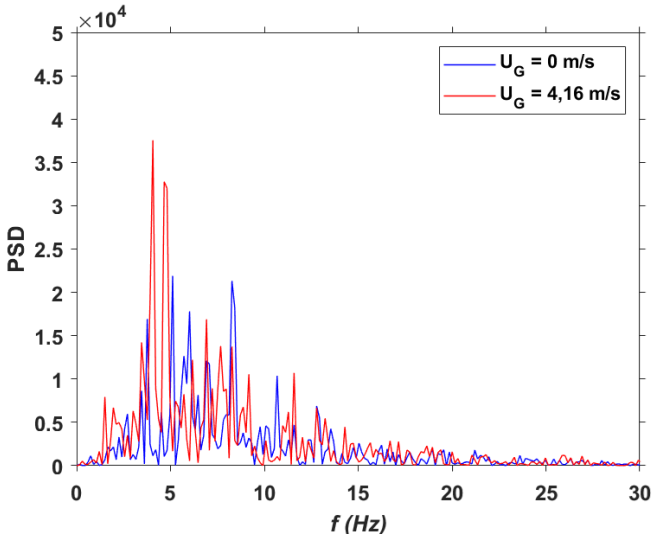


Figure IV.29. *Densité spectrale de puissance (PSD) de la fluctuation de l'épaisseur du film pour W-G2.*

Les résultats observés sont en accord avec les résultats expérimentaux de Nicolas Kofman (2014) et Vitry (2011) qui ont montrés que l'amplitude des ondes principales augmente en parallèle avec une diminution de la fréquence d'onde capillaire. La **Figure IV.30** illustre les résultats expérimentaux de Nicolas Kofman (2014) en utilisant l'eau comme fluide d'étude. Une augmentation de l'épaisseur du film et une diminution importante de la vitesse des ondes sont observées à partir de U_G = 3 m/s. La méthode utilisée dans l'étude de Nicolas Kofman (2014) est une méthode ponctuelle (confocal chromatique) et la section de passage du gaz est de plus de 18 mm, ce qui est dans tous les cas supérieur à la section de passage de notre étude (12 mm). Ceci a permis de limiter les projections de liquide et d'appliquer les mesures à une vitesse de gaz élevée.

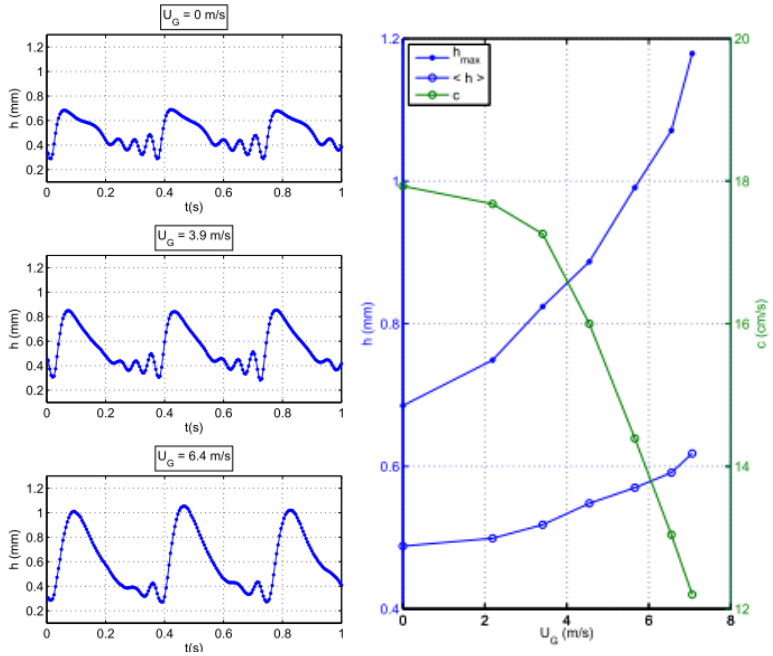


Figure IV.30. *Variation de l'épaisseur maximale δ_{max} (h_{max}) et de la vitesse des vagues c vs. La vitesse du contre-courant gaz U_G pour l'eau* (Nicolas Kofman, 2014).

IV.4 Impact du débit liquide et de l'inclinaison.

Plaque plane

L'objectif de cette partie est d'examiner l'impact du débit liquide et de l'inclinaison sur l'épaisseur et la vitesse interfaciale du film liquide. Dans l'application industrielle, en augmentant le débit liquide, un excès de liquide entre dans la colonne garnie ce qui peut entrainer un phénomène d'engorgement et par suite une augmentation de la perte de charge, de la rétention liquide ainsi qu'une perte d'efficacité de séparation, d'où l'importance de l'étude du débit liquide (Chen et al., 2019).

Contrairement à ce qui a été fait dans la section IV.1.4, l'épaisseur moyenne du film est calculée en utilisant les résultats de 1000 images sur l'ensemble de la fenêtre de mesure et non plus dans la ligne 2 uniquement (**Figure III.14.a**). La même procédure est appliquée pour calculer le champ de vitesse interfaciale moyen (les mêmes 1000 images successives). La **Figure IV.31** illustre la variation de l'épaisseur moyenne et de la vitesse à l'interface en fonction du débit liquide pour les différents fluides. Dans le cas des fluides à faible tension de surface W-E1 et W-E2, la vitesse moyenne augmente significativement (entre 34 et 40 %) lorsque le débit liquide passe de 80 L/h à 180 L/h. La vitesse interfaciale moyenne maximale est de 0,45 m/s. L'effet du débit liquide est un peu moins important sur l'épaisseur du film liquide. Les résultats montrent une augmentation relative maximale de 28% de l'épaisseur moyenne, sauf dans le cas du fluide W-E2 à θ = 20° qui présente un taux d'augmentation de 37 %.

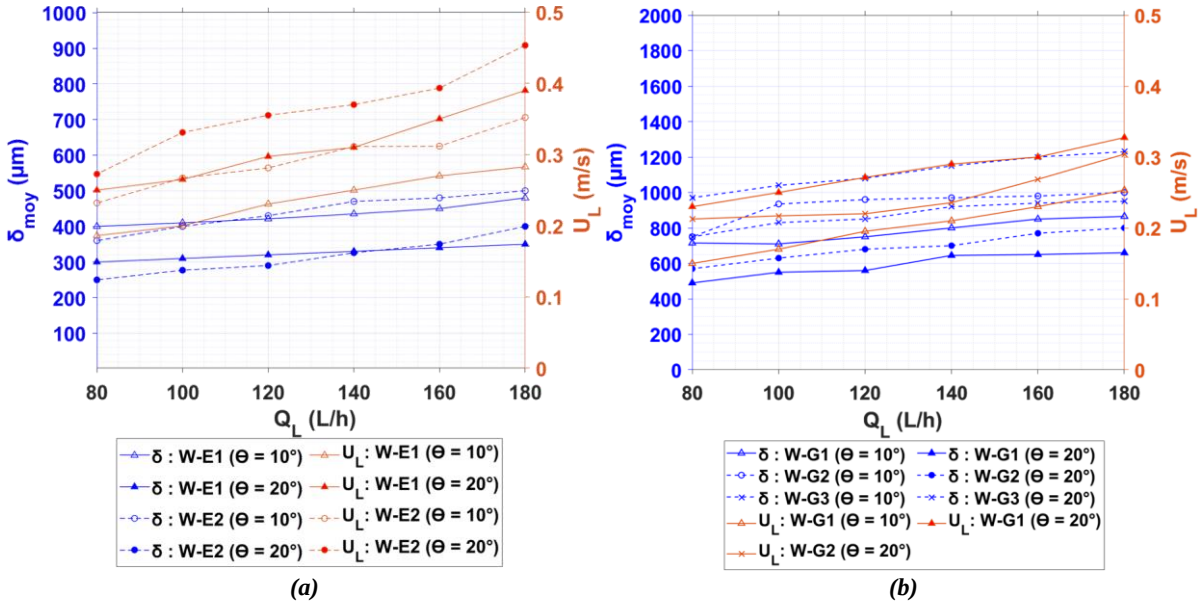


Figure IV.31. *Variation de l'épaisseur moyenne du film δ_{moy} et de la vitesse interfaciale U_L en fonction du débit liquide Q_L pour (a) : W-E1 et W-E2 (b) : W-G1, W-G2 et W-G3.*

Pour les fluides visqueux, il n'est pas possible de quantifier le champ de vitesse pour toutes les conditions opératoires en raison de l'absence des fluctuations de l'épaisseur du film (ondulation liquide) dans la fenêtre de mesure (couche mince liquide sans perturbation). L'application de la méthode de flot optique nécessite une variation de l'intensité de fluorescence dans la fenêtre de mesure. Sous certaines conditions opératoires, l'écoulement est sous forme d'une couche mince non perturbée et par suite l'intensité de fluorescence enregistrée sur chaque pixel de la fenêtre de mesure ne varie pas d'une image à une autre. Ces cas représentent la limite d'application de la méthode de flot optique.

La **Figure IV.31.b** montre un effet similaire pour les fluides visqueux, la vitesse interfaciale et l'épaisseur moyenne du film liquide augmentent avec l'augmentation du débit liquide.

De plus, une augmentation importante de l'épaisseur moyenne du film liquide est observée en augmentant la viscosité du film liquide.

Pour l'ensemble des cinq fluides, l'épaisseur du film est amortie lorsque l'inclinaison θ augmente. Afin de comprendre ce résultat, les **Figures IV.32.a** et **IV.32.b** illustrent l'écoulement du fluide W-G1 à θ = 10 et 20 ° pour un débit liquide fixé à Q_L = 180 L/h. Ces figures montrent une diminution de l'épaisseur du film au niveau du substrat liquide en augmentant l'inclinaison de la plaque et une augmentation de l'épaisseur au niveau des crêtes des ondulations. Cette augmentation de l'épaisseur au niveau des crêtes des ondulations liquides s'explique par une rétention liquide plus faible au niveau du substrat liquide.

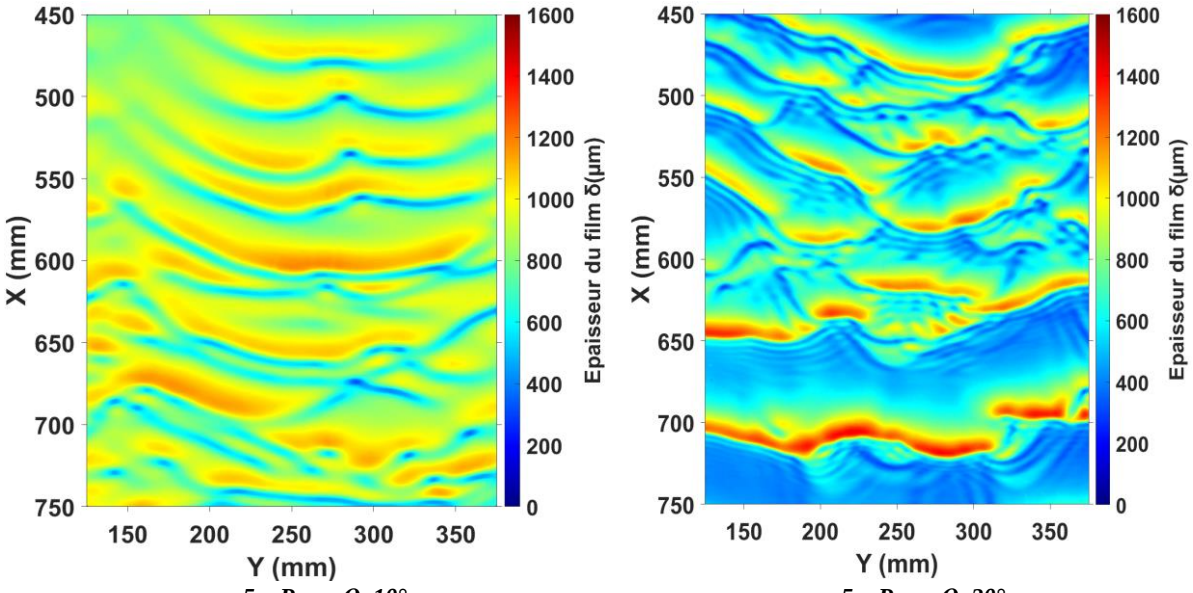


Figure IV.32. *Influence de l'inclinaison de la plaque d'étude sur la topologie de l'écoulement film liquide pour (a) : W-G1 à θ = 10° et (b) : W-G1 à θ = 20°.*

Les **Figures IV.33.a** et **IV.33.b** représentent la forme adimensionnelle $\bar{h}$ en fonction de Re à θ= 10°. Les résultats de l'épaisseur sont normalisés comme suivant : $\bar{h}= \delta/(4g \sin\theta / 3\nu^2)^{\frac{1}{3}}$ pour une comparaison directe avec la solution analytique de Nusselt (**Eq. I.6**) (Lel et al., 2005). Nous pouvons observer que les résultats obtenus de l'épaisseur du film liquide pour les fluides visqueux sont en bon accord (**Figure IV.33.b**) avec la solution analytique de Nusselt. Dans le cas des fluides à faible tension de surface, nous pouvons remarquer que l'écart entre les valeurs expérimentales et les valeurs théoriques est important.

Ce résultat s'explique par le fait que la solution analytique donne des valeurs plus proches de la réalité dans le cas d'un écoulement à interface lisse non perturbée. Ceci est clair en comparant les résultats du fluide visqueux W-G3 à faible inclinaison qui représente un film liquide non perturbé (δ constante) dont les résultats expérimentaux et théoriques se superposent. Ce constat permet de donner une deuxième estimation de l'erreur de mesure de δ (± 7%).

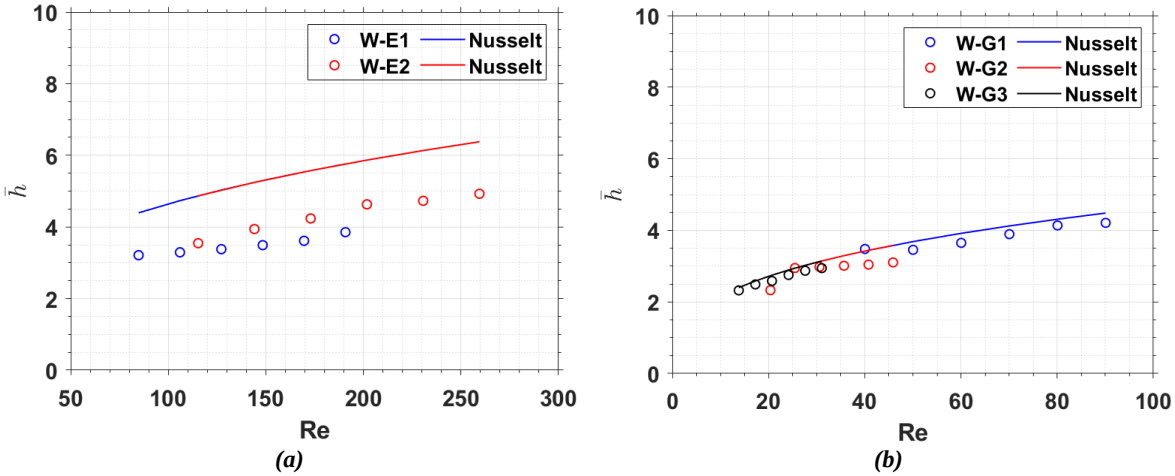


Figure IV.33. *Evolution de l'épaisseur adimensionnelle $\bar{h}$ pour (a) : W-E1 et W-E2 (b) : W-G1, W-G2 et W-G3 vs. Re à θ = 10°.*

Plaque corruguée transversale

Dans cette partie, l'effet du débit liquide est étudié sur la structure de l'écoulement et sur les variations locales de l'épaisseur du film et de la vitesse interfaciale. En parallèle, on s'intéresse également à comprendre l'effet de la géométrie de la plaque sur la structure de l'écoulement à faible débit. Pour cela, la débit liquide est réduit jusqu'à $Q_L = 80$ L/h. L'impact du débit liquide sur la structure des ondulations liquides est illustré dans les **Figures IV.34.a** et **IV.34.b** pour les fluides respectifs W-E1 et W-E2. Ces figures montrent qu'en diminuant le débit liquide à $Q_L = 80$ L/h les vagues déferlantes observées à Q_L = 180 L/h ont disparu. Une forte diminution des instabilités des ondulations liquides et de l'épaisseur du film liquide (δ < 1500 µm) est remarquée pour les deux fluides (**Figures IV.34.a** et **IV.34.b**) en comparant avec les résultats illustrés dans les **Figures IV.3.a** et **IV.3.b** à Q_L = 180 L/h. Ces

images de l'écoulement à Q_L = 80 L/h permettent de constater également une diminution des ondes capillaires dans le cas de l'écoulement du fluide W-E1 en comparant avec la structure de l'écoulement du fluide W-E2. Ces résultats sont en accord avec ceux obtenus sur la plaque plane et qui montrent que l'augmentation de la tension de surface induit une fréquence plus élevée des ondes capillaires (**Figures IV.1.a** et **IV.1.b**).

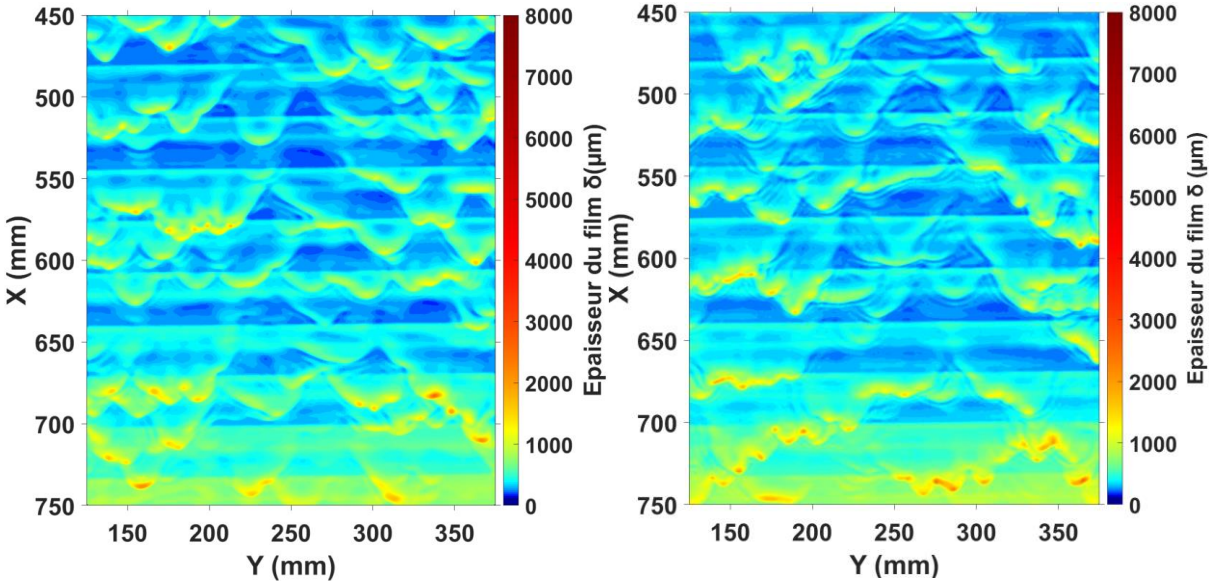
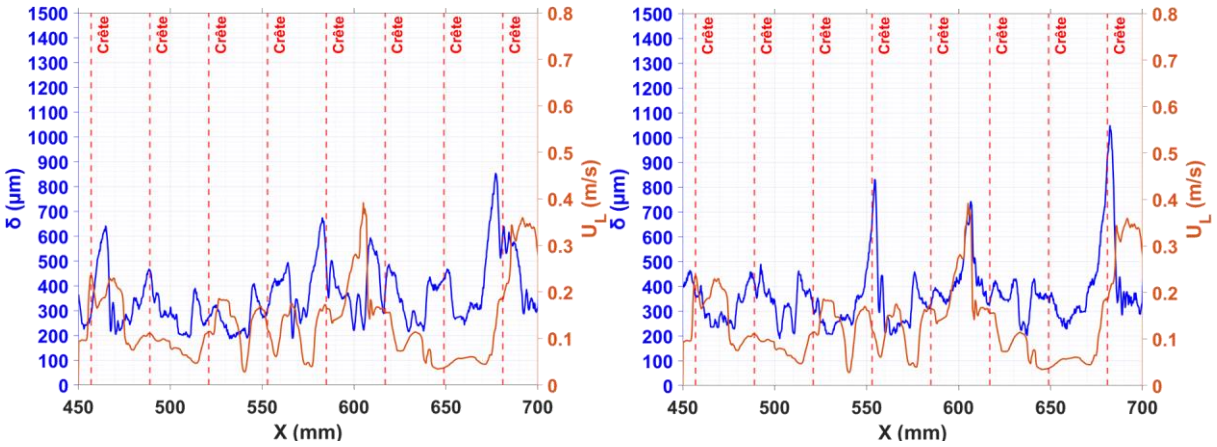


Figure IV.34. *Influence du débit liquide sur la topologie de l'écoulement du film liquide pour (a) : W-E1 et (b) : W-E2.*

Afin d'approfondir la compréhension de l'impact du débit liquide sur les structures d'écoulement, les **Figures IV.35.a** et **IV.35.b** montrent l'évolution de l'épaisseur du film et de la vitesse interfaciale selon la distance longitudinale X. On constate l'absence du phénomène d'ondes déferlantes lesquelles étaient identifiées dans les **Figures IV.7.a** et **IV.7.b** avec des amplitudes atteignant 7000 µm, le maximum n'étant ici que de 1000 µm.

En ce qui concerne la vitesse interfaciale, les pics de vitesse ne sont plus présents lorsqu'on diminue le débit liquide, ce qui est directement lié à l'absence des déferlements et d'ondulations à épaisseur très élevée. Contrairement au cas de l'écoulement à Q_L = 180 L/h, les résultats à faible débit montrent une augmentation globale de l'épaisseur des ondulations principales avec la distance longitudinale X.



σ = 35 mN/m - Θ=60°
Ka = 670 - Re = 85
Q_L = 80 L/h - Q_G = 0 m^3/h

(a)

σ = 50 mN/m - Θ=60°
Ka = 1414 - Re = 115
Q_L = 80 L/h - Q_G = 0 m^3/h

(b)

Figure IV.35. *Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film δ et de la vitesse interfaciale U_L pour (a) : W-E1 et (b) : W-E2.*

Les **Figures IV.36.a** et **IV.36.b** montrent la structure des écoulements des fluides visqueux W-G2 et W-G3. Ces figures montrent une forte diminution des ondes principales à épaisseur élevée et l'absence des déferlements liquides qui sont présentes à fort débit liquide. Une rétention liquide plus importante est observée au niveau des pentes positives de chaque corrugation par rapport à celles des pentes négatives. Ces résultats sont clairement observés dans les **Figures IV.36.c** et **IV.36.d** qui montrent l'évolution de l'épaisseur du film selon la position des crêtes et des creux.

Ces résultats montrent que lorsque la viscosité augmente la fréquence des ondulations liquides est atténuée. L'évolution de l'épaisseur du film pour le fluide W-G2 montre trois pics correspondants à trois ondulations liquides au niveau de la ligne 2. Pour le fluide W-G3, le film liquide qui se déplace suit parfaitement les corrugations de la plaque d'étude avec une forte diminution de la fréquence des ondulations liquides.

Plus le fluide s'écoule selon la distance X, plus la rétention liquide est importante sur les pentes positives des corrugations. Comme il existe une zone plane avant la zone corruguée de la plaque d'étude (**Figure III.2**), dont l'objectif est d'étaler le fluide sur la largeur de la plaque, le fluide atteint la première corrugation avec une vitesse élevée et cette vitesse décélère au fur et à mesure que le fluide passe d'une corrugation à une autre ce qui induit une rétention liquide plus importante. Cette décélération est due à l'absence des ondulations liquides à forte amplitude et des vagues déferlantes pour ce faible débit liquide.

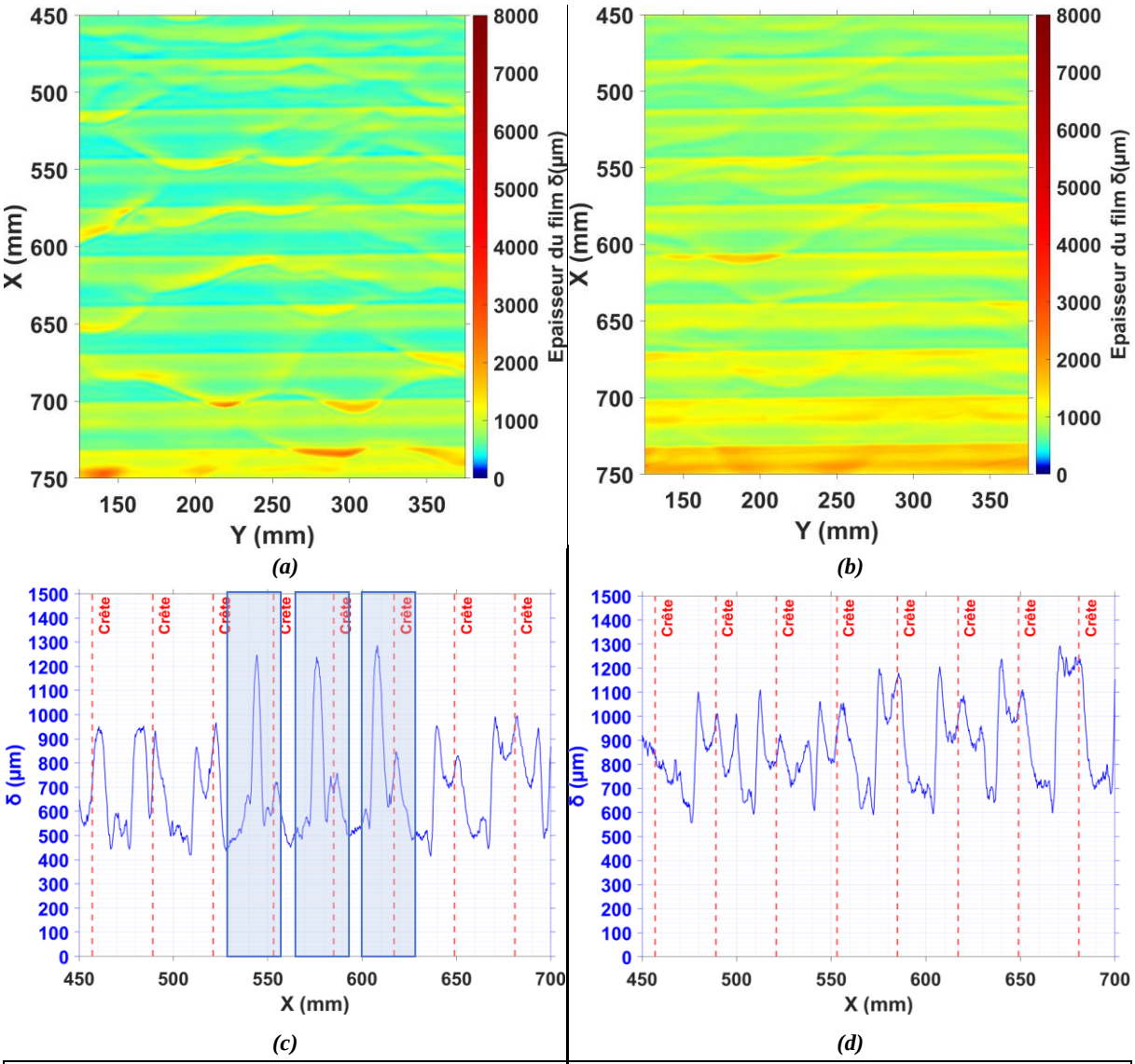


Figure IV.36. *Influence de la viscosité sur la topologie de l'écoulement de film liquide pour (a): W-G2 (b) : W-G3. Evolution de l'épaisseur du film pour (c) : W-G2 et (d) : W-G3.*

IV.5 Discussion et conclusions

Dans ce chapitre, la méthode optique non-intrusive basée sur l'intensité de fluorescence a été appliquée pour quantifier l'épaisseur et la vitesse interfaciale du film liquide sur la plaque plane (θ = 10° et 20°) et la plaque corruguée transversale (θ = 60°). Cinq fluides ayant des propriétés physico-chimiques différentes ont été utilisés, deux mélanges eau-éthanol à faible tension de surface W-E1 (σ = 35 mN/m) et W-E2 (σ = 50 mN/m) et trois mélanges eau-glycérol à viscosité élevée W-G1 (μ = 5 mPa.s), W-G2 (μ = 10 mPa.s) et W-G3 (μ = 15 mPa.s). De nombreux phénomènes de dynamique d'ondulation liquide ont été observés évoluant selon les propriétés physico-chimiques des fluides d'études, la géométrie des plaques, les débits liquide et gaz et l'angle d'inclinaison des plaques.

Les principaux résultats peuvent se résumer comme suit :

Plaque plane :

(1) La tension superficielle exerce une influence stabilisatrice sur l'écoulement. Des ondes principales précédées par des ondes capillaires se forment dans le cas du fluide W-E1, suivies d'une couche mince liquide sans perturbation. Des ondes 3D à fréquence élevée en forme de W se forment dans le cas du fluide W-E2. Lorsque la viscosité du film augmente, l'instabilité capillaire est amortie et remplacée par des ondes solitaires. L'épaisseur du substrat liquide augmente avec l'augmentation de la viscosité.

(2) La vitesse des ondes augmente globalement avec la distance en aval pour tous les liquides, ce qui est lié à la force de gravité et à l'augmentation de l'épaisseur du film. La vitesse interfaciale augmente avec l'augmentation de la tension de surface et diminue avec l'augmentation de la viscosité.

(3) À contre-courant gaz, l'épaisseur maximale du film liquide au niveau des ondes principales et la vitesse interfaciale correspondante sont peu impactées à faible vitesse de gaz ($0 < U_G < 3$ m/s). A partir de U_G = 3 m/s la fréquence des ondes capillaires est atténuée et la vitesse interfaciale diminue. En augmentant U_G, la distance entre les ondulations liquides principales augmente ce qui implique une augmentation des zones sans perturbation. Le même effet est observé pour les fluides visqueux et les fluides à faible tension de surface.

(4) En augmentant l'inclinaison de la plaque plane de 10° à 20°, l'épaisseur moyenne du film liquide diminue pour l'ensemble des cinq fluides. En augmentant le débit liquide, la vitesse interfaciale augmente significativement pour les fluides W-E1 et W-E2 alors que cette augmentation est moins importante dans le cas des fluides visqueux. Une comparaison des résultats expérimentaux avec la solution analytique de Nusselt a montré un bon accord dans le cas d'un écoulement de film liquide sans perturbation. Des écarts importants à la solution de Nusselt apparaissent dans les cas où le film liquide présente de fortes instabilités.

Plaque corruguée transversale :

(1) Une forte perturbation des ondes liquides a été observée en passant de la plaque plane à la plaque corruguée transversale et en augmentant l'inclinaison de la plaque. Le phénomène des vagues déferlantes a été observé à faible tension de surface. Lorsque la viscosité augmente, la fréquence des vagues et des déferlements liquides diminue, la longueur d'onde des ondulations liquides principales augmente considérablement et le liquide ruissèle en phase avec les corrugations de la plaque solide, en particulier à faible débit liquide.

(2) Le phénomène de vague déferlante est un phénomène complexe. Les vagues déferlantes commencent à apparaitre au niveau des crêtes et leur amplitude s'amplifie après la crête. En revanche, l'épaisseur minimale δ_{min} est plus importante au niveau des creux qu'au niveau des crêtes ce qui est lié à la rétention liquide plus importante dans les creux.

(3) La vitesse interfaciale augmente significativement au niveau des déferlements liquides et des ondulations liquides à épaisseur importante. Contrairement aux résultats sur la plaque plane et dans le cas d'écoulement en film mince à débit élevé, la vitesse interfaciale des ondulations liquides est indépendante de la distance longitudinale X et seulement liée à la structure locale du film mince.

(4) En diminuant le débit liquide, le phénomène de vague déferlante n'est plus observé et une forte diminution des instabilités est remarquée sur la structure de l'écoulement en film mince, ce qui implique la diminution de l'épaisseur des ondes principales. Les résultats de l'écoulement à faible débit liquide permettent de constater une apparition d'ondes capillaires dans le cas du fluide W-E2 alors que dans le cas du fluide W-E1 ces ondes capillaires ne sont pas présentes. Ce constat a été également observé sur les résultats de la plaque plane ce qui est lié à l'augmentation de la tension de surface.

(5) A faible débit liquide et en augmentant la viscosité du film liquide, la fréquence des ondulations liquides est atténuée. Le film liquide suit parfaitement les corrugations de la plaque d'étude. Une rétention liquide est observée au niveau de la pente positive des corrugations et cette rétention augmente avec la distance longitudinale X.

Les résultats obtenus sur la plaque corruguée transversale montrent une forte influence de la géométrie de la plaque sur la morphologie de l'écoulement en film mince. Cette influence est notablement liée aux corrugations transversales ce qui provoque des phénomènes d'ondulations liquides variées comme le phénomène de déferlantes liquides. Ces phénomènes ne sont pas présents sur la plaque plane, et amplifient les instabilités dans la structure de l'écoulement. Ces instabilités sont susceptible d'augmenter sensiblement le transfert de matière dans les applications industrielles (Nicolas Kofman, 2014). Ceci souligne l'importance des géométries des garnissages structurés et de l'étude de l'effet des différentes géométries de plaque sur l'hydrodynamique de l'écoulement.

Chapitre V: Plaque similaire au Mellapak™ 250Y

Dans ce chapitre, la plaque d'étude est la plaque ayant une géométrie similaire à celle d'une tôle du garnissage Mellapak™ 250Y (**Figure III.3**). Elle est placée à la verticale (θ = 90°), comme dans le cas d'une colonne industrielle. Comme décrit dans la section III.1.2, les corrugations de la plaque sont inclinées d'un angle de 45° par rapport à la verticale et leur géométrie est simplifiée par rapport à celle des garnissages structurés commerciaux (pas de perforation et pas de gaufrage). Le système d'injection liquide par débordement est remplacé par 16 tubes d'injection.

Dans une première section (V.1) de ce chapitre, l'impact du système d'injection liquide sur la structure de l'écoulement est étudié. Ensuite est analysé l'impact des paramètres physico-chimiques sur la structure de l'écoulement de chaque fluide d'étude (section V.2) ainsi que sur la vitesse interfaciale (section V.3). Les résultats présentés dans ces sections sont à débit constant Q_L = 200 L/h.

Dans la section V.4, l'impact du débit liquide sur l'hydrodynamique des écoulements est présenté.

Dans une dernière section (V.5), l'impact du contre-courant gaz sur le coefficient de transfert côté liquide est estimé à différentes vitesses de gaz. L'effet des paramètres physico-chimiques est également étudié afin de comprendre l'impact de la viscosité et de la tension de surface sur le transfert de matière.

Dans cette partie, étant donné que le système d'alimentation liquide est différent de celui utilisé sur les plaques plane et corruguée transversale, le nombre de Reynolds est estimé dans le cas de la plaque similaire au Mellapak™ 250Y comme suit :

$$Re = \frac{\rho\, Q_L}{\mu\, \kappa} \qquad \textit{Eq. V.1}$$

Dans cette équation, Q_L (m^3/s) représente le débit liquide, ρ (kg/m^3) la masse volumique, μ la viscosité dynamique (Pa.s). Le paramètre κ est calculé en se basant sur la méthode de Solomenko (2016) qui a utilisé un système d'injection liquide similaire à celui de cette thèse. Il est défini comme suit :

$$\kappa = \mathrm{N}\frac{2\sqrt{h_c^2 + \left({}^{b_c}/_{2}\right)^2}}{\sin\alpha_c} \qquad \textit{Eq. V.2}$$

Dans cette équation, N représente le nombre de canaux, h_c(m) la hauteur de la corrugation solide, b_c (m) la base de la corrugation et α_c (rad) l'angle de la corrugation avec l'horizontale.

On rappelle que pour cette géométrie de plaque, les lignes d'intérêt (les trois lignes) ne sont pas les mêmes que dans le cas des plaques plane et corruguée transversale. Ces lignes varient selon la structure de l'écoulement comme illustré sur les **Figures III.15.a** et **III.15.b**.

V.1 Impact du système d'injection

V.1.1 Profil d'écoulement liquide et étude de mouillabilité

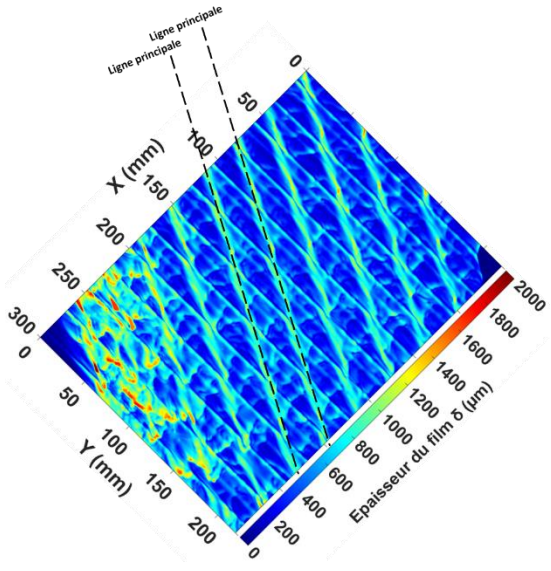
Dans cette partie, le débit liquide est maintenu constant à Q_L = 200 L/h afin d'analyser l'impact du système d'injection sur la structure de l'écoulement. Les **Figures V.1.a** et **V.1.b** illustrent la structure de l'écoulement des fluides W-E1 (σ = 35 mN/m) et W-E2 (σ = 50 mN/m) sur la plaque Mellapak^{TM} 250Y. Malgré l'utilisation de 16 tubes d'alimentation liquide, il n'est pas possible de mouiller l'ensemble de la fenêtre de mesure. Dans ces figures, les zones triangulaires en bleu foncé (270 < X < 300 et 0 < Y < 50 pour W-E1 et 250 < X < 300 et 0 < Y < 110 pour W-E2) représentent des zones sèches. Ces figures montrent également des stries bleu clair d'un angle d'environ 10° par rapport à la verticale qui représentent les zones où l'épaisseur du film est la plus grande et qui correspondent donc à la direction principale d'écoulement du film, nommée par la suite « **ligne principale** ». L'espacement des lignes est le même que celui des tubes d'injection verticaux et reflète le chemin préférentiel (lignes principales dans les **Figures V.1.a** et **V.1.b**) du liquide qui sort de ces tubes sans dispersion majeure.

L'écoulement est fortement instable au niveau des 6 tubes (200 < X < 270 pour W-E1 et 200 < X < 240 pour W-E2 dans les **Figures V.1.a** et **V.1.b**) qui alimentent la plaque sur le côté (**Figures III.5.a** et **III.5.b**), par rapport à l'écoulement qui arrive par l'intermédiaire des 10 tubes verticaux (0 < X < 200 pour W-E1 et 0 < X < 200 pour W-E2 dans les **Figures V.1.a** et **V.1.b**). Ceci est lié à l'impact de l'angle d'alimentation ; les tubes verticaux alimentent la plaque dans chaque creux et ainsi le liquide sortant de ces tubes entre au début en contact avec la pente de la corrugation. Ce contact représente un amortisseur de la force d'inertie du fluide ruisselant sur la plaque contrairement aux 6 tubes qui alimentent par le côté. Le liquide sortant de ces 6 tubes n'entre pas en contact avec les corrugations de la plaque en sortant des tubes ce qui implique une plus grande vitesse d'écoulement initiale.

Dans le cas des fluides visqueux W-G1 (μ = 5 mPa.s), W-G2 (μ = 10 mPa.s) et W-G3 (μ = 15 mPa.s) l'impact de ce contact sur la structure de l'écoulement est négligeable comme illustré dans les **Figures V.1.c**, **V.1.d** et **V.1.e**. En effet, on remarque que l'écoulement suit parfaitement la corrugation de la plaque d'étude et ne suit pas le cheminement des tubes d'alimentation comme dans le cas des fluides W-E1 et W-E2. Les figures des fluides visqueux illustrent également l'effet du système d'injection liquide sur l'écoulement. Au niveau des 6 tubes, l'épaisseur des ondulations principales est plus importante qu'au niveau de l'écoulement provenant des 10 tubes verticaux.

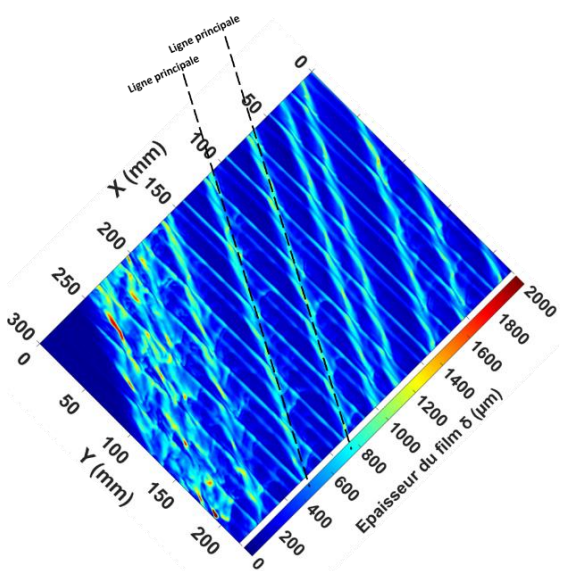
Ces figures montrent aussi que la surface mouillée pour l'ensemble des fluides est approximativement identique sauf dans le cas du fluide W-E1 ayant la plus faible tension de surface. Ce fluide présente la plus grande surface mouillée par rapport aux autres fluides. Le système d'alimentation liquide par tube

a un effet significatif sur la propagation des ondulations liquides surtout dans le cas des fluides W-E1 et W-E2.



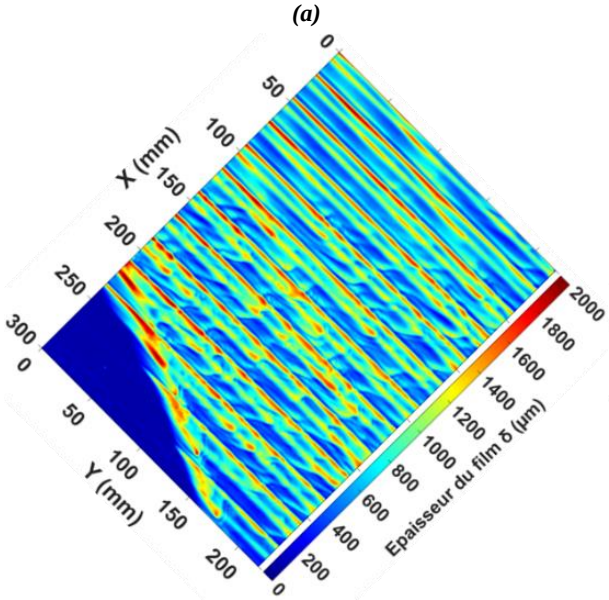
σ = 35 mN/m - Θ=90°
Ka = 638 - Re = 18
Q_L = 200 L/h - Q_G = 0 m³/h

(a)



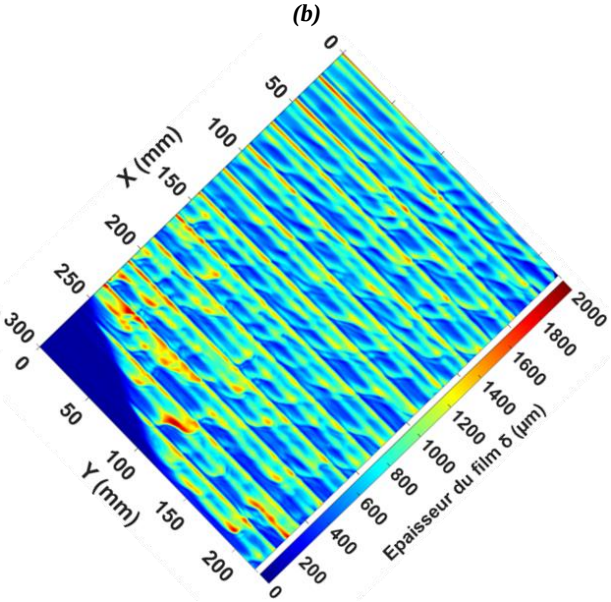
σ = 50 mN/m - Θ=90°
Ka = 1348 - Re = 31
Q_L = 200 L/h - Q_G = 0 m³/h

(b)



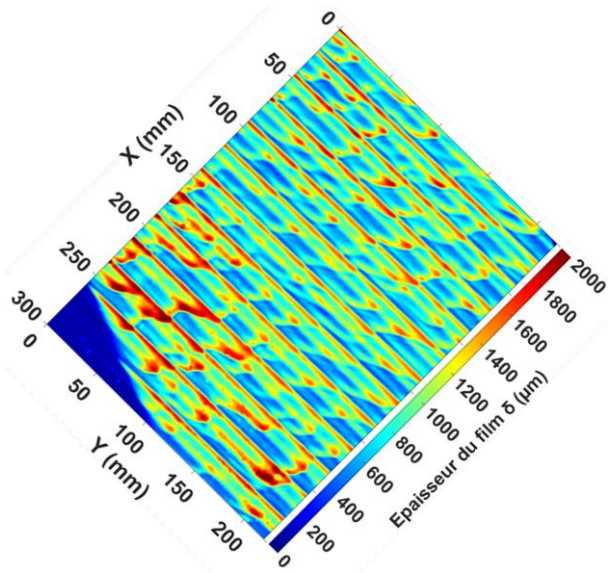
μ = 5 mPa.s - Θ=90°
Ka = 386 - Re = 10
Q_L = 200 L/h - Q_G = 0 m³/h

(c)



μ = 10 mPa.s - Θ=90°
Ka = 152 - Re = 5
Q_L = 200 L/h - Q_G = 0 m³/h

(d)



μ = 15 mPa.s - Θ=90°
Ka = 90 - Re = 3
Q_L = 200 L/h - Q_G = 0 m³/h
(e)

Figure V.1. *Influence de la géométrie de la plaque d'étude sur la topologie de l'écoulement de film liquide pour (a) : W-E1 (b) : W-E2 (c) : W-G1 (d) : W-G2 et (e) : W-G3.*

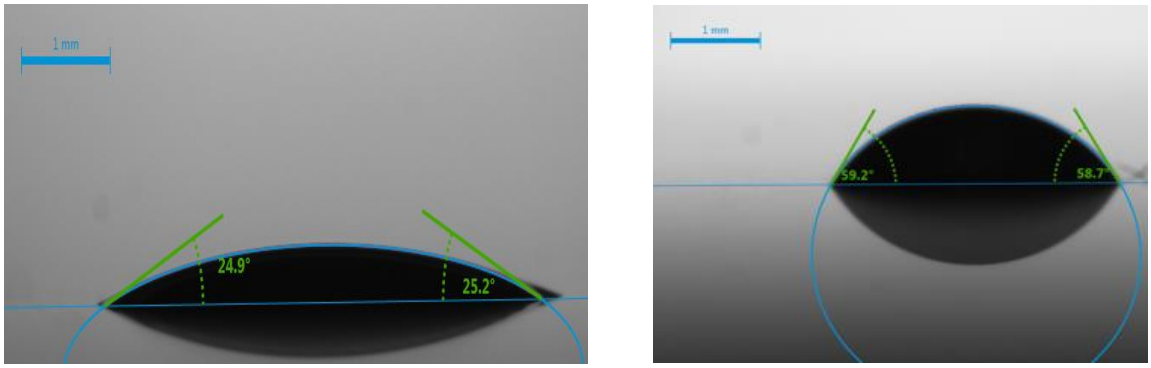
V.2 Impact des paramètres physico-chimiques et de la topologie de la plaque

V.2.1 Effet de la tension de surface

Comme décrit dans la partie précédente, la **Figure V.1.a** illustrant l'écoulement du fluide W-E1 montre que la mouillabilité du film liquide est plus importante par rapport à celle du fluide W-E2 puisque la zone sèche est plus petite que dans le cas du fluide W-E2 (**Figure V.1.b)**. De plus, en comparant les deux figures de l'écoulement W-E1 et W-E2, on observe que dans le cas du fluide W-E1, des ondulations liquides se propagent le long des crêtes et dans les creux en parallèle avec l'écoulement au niveau des lignes principales. Une interaction de fluide est présente entre les différentes lignes principales d'écoulement ce qui n'est pas présent dans le cas du fluide W-E2. Cette interaction se manifeste par des ondes liquides qui passent d'une ligne principale de l'écoulement à une autre en se propageant entre les corrugations de la plaque d'étude. Cette propagation est liée à la faible tension de surface qui induit une faible cohésion des molécules au sein du film et par suite une meilleure mouillabilité et distribution du fluide sur la surface de la plaque. Dans le cas du fluide W-E2, l'absence de l'interaction entre le liquide de chaque ligne d'écoulement est bien claire (**Figure V.1.b**). Le film liquide ruissèle uniquement dans le sens des lignes principales et suit le cheminement des tubes sans propagation d'une ligne à une autre. Pour le film liquide provenant des 6 tubes sur le côté, on remarque l'apparition du phénomène de vagues déferlantes mais à une faible amplitude (δ_{max} = 2075

µm). La fréquence de ces vagues diminue significativement dans le cas du fluide W-E2 à cause de la tension de surface qui est plus élevée dans ce cas.

Afin de comprendre l'effet de la tension de surface sur la propagation des ondulations liquides et la mouillabilité, une étude de l'angle de contact statique γ est effectuée. Une goutte de liquide est placée sur une pièce en aluminium ayant les mêmes caractéristiques surfaciques que plaque d'étude et l'angle de contact est mesuré en utilisant un tensiomètre Krüss modèle DSA100 à température T = 21°C et à pression ambiante P = 1 atm. Les résultats de mesure de l'angle de contact (**Figures V.2.a** et **V.2.b**) confirment les résultats d'une meilleure mouillabilité et de propagation d'onde liquide plus importante dans le cas du fluide W-E1 (γ < 25°) en comparant avec les résultats du fluide W-E2 (γ < 59°).



W-E1 *W-E2*

(a) *(b)*

Figure V.2. *Mesure de l'angle de contact statique pour (a) : W-E1 et (b) : W-E2.*

V.2.2 Effet de la viscosité

La **Figure V.1.c** illustre la structure de l'écoulement du fluide W-G1 et montre que la majorité du fluide ne suit pas le cheminement des tubes. En augmentant la viscosité, les **Figures V.1.d** et **V.1.e** montrent que le fluide suit les corrugations de la plaque avec une quantité de liquide importante dans les creux de chaque corrugation. En comparant les **Figures V.1.d** et **V.1.e**, on remarque que la structure des ondulations liquides n'a pas changé significativement, la seule différence est dans l'épaisseur du film liquide qui augmente avec l'augmentation de la viscosité. L'absence des vagues déferlantes est bien claire dans le cas des trois fluides visqueux ce qui est lié à la géométrie de la plaque d'étude qui réduit ce phénomène. De plus, l'augmentation de la viscosité implique une meilleure mouillabilité de la plaque d'étude puisque la surface de la zone sèche est réduite. Ces résultats montrent que la viscosité du fluide permet d'avoir une meilleure homogénéité et répartition de l'écoulement ce qui peut améliorer les performances des colonnes à garnissage structuré. Des résultats similaires ont été observés dans les travaux de Janzen et al. (2013a) qui ont montré que l'augmentation de la viscosité induit une meilleure mouillabilité dans les garnissages.

V.2.3 Distribution de l'épaisseur dans différentes zones

Dans cette partie, l'objectif est d'étudier l'évolution de l'épaisseur du film dans différentes zones de la plaque d'étude. Pour rappeler les lecteurs de l'emplacement des lignes d'intérêt, les **Figures V.3.a** et **V.3.b** illustrent leurs positions pour les fluides à faible tension de surface et pour les fluides visqueux.

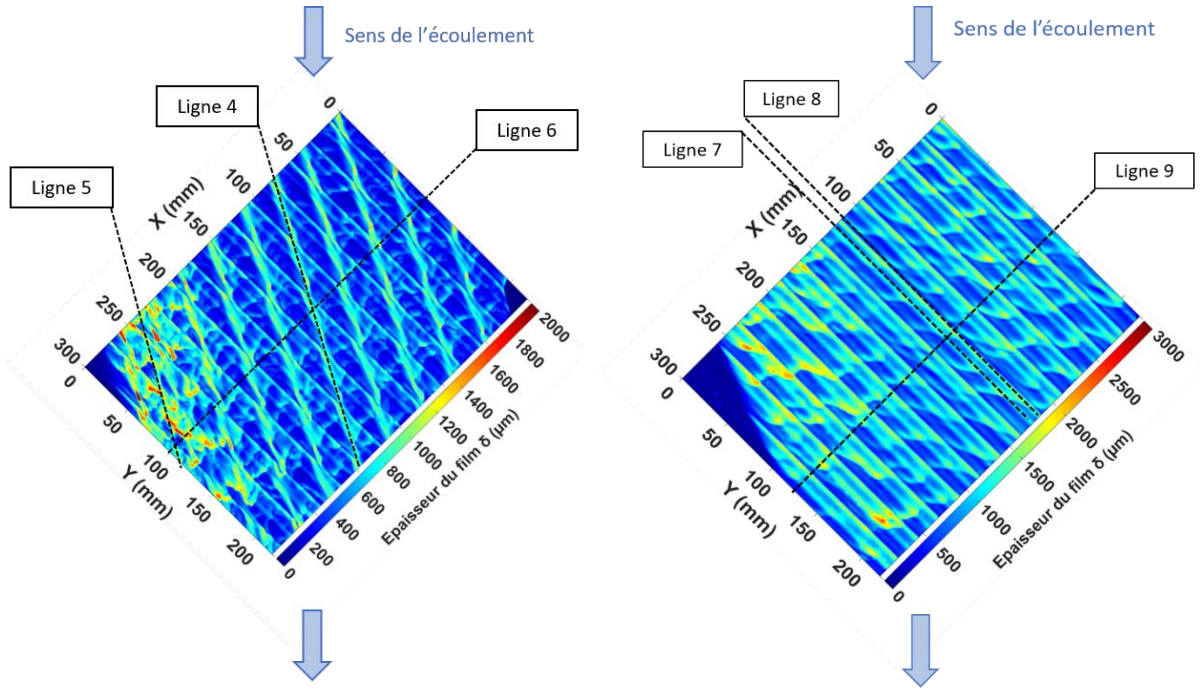


Figure V.3. *Lignes d'intérêt dans la fenêtre de mesure sur la plaque Mellapak^{TM} 250Y pour (a) : W-E1 et W-E2 (b) : W-G1, W-G2 et W-G3.*

Les **Figures V.4.a** et **V.4.b** illustrent l'évolution de l'épaisseur du film dans ces trois lignes avec une variation du nombre de pixels (axe des abscisses) en raison du changement de la position des lignes principales entre le fluide W-E1 et W-E2 (**Figures V.1.a** et **V.1.b**).

Pour le fluide W-E1, la **Figure V.4.a** montre une tendance de diminution globale dans l'épaisseur du film le long des lignes 4 et 5. Ce comportement s'explique en comparant la structure de l'écoulement dans ces deux zones. On remarque que dans la région I de la **Figure V.5.a**, le fluide est majoritairement confiné au niveau des lignes principales alors que dans la région II la propagation et la distribution des ondes entre les lignes principales s'amplifie. Cette propagation d'ondulation induit une diminution de l'épaisseur au niveau des lignes principales.

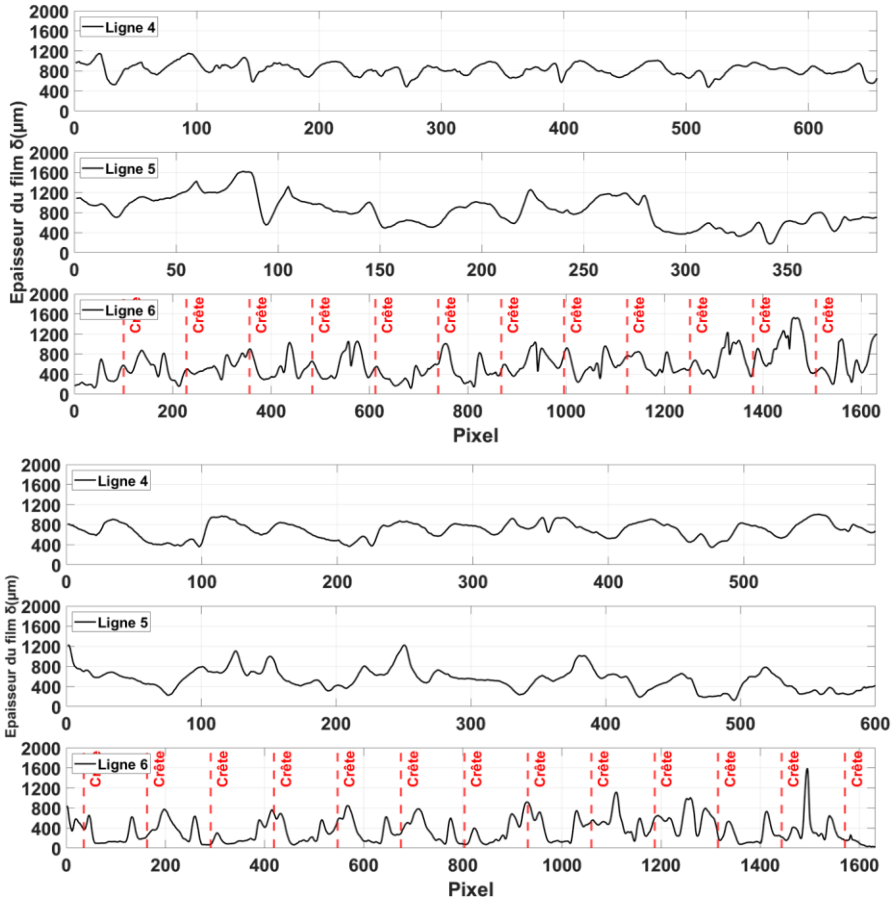
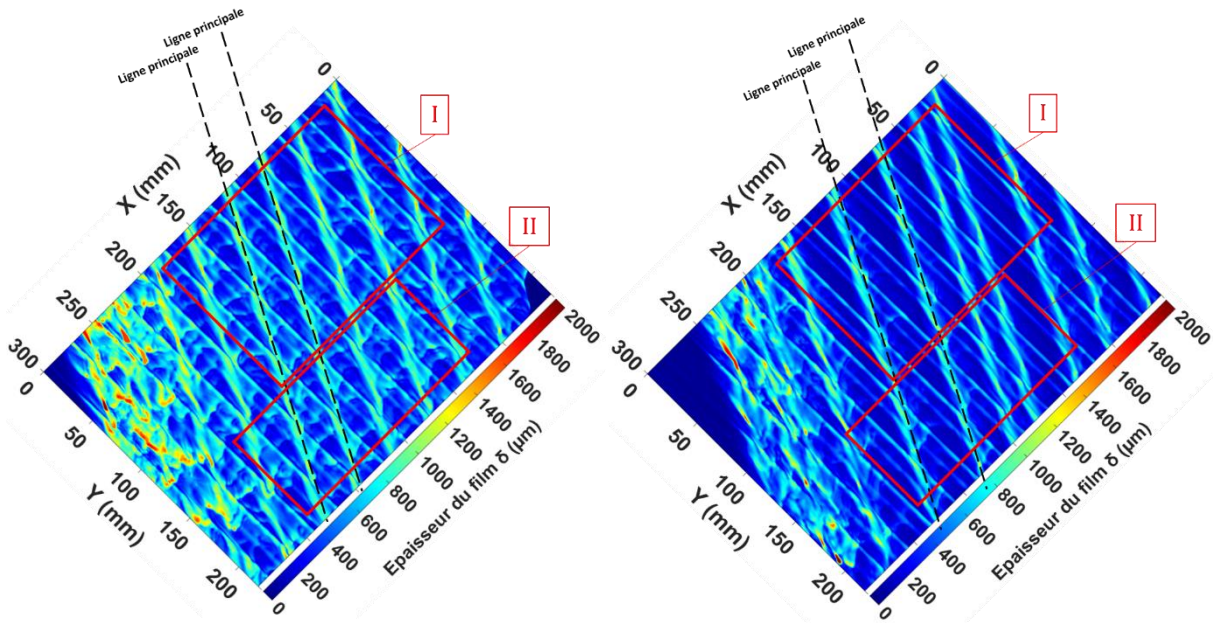


Figure V.4. *Distribution instantanée de l'épaisseur du film pour (a) : W-E1 et (b) : W-E2.*

Pour le fluide W-E2, on remarque que l'épaisseur moyenne du film liquide est constante dans la ligne 4. Ce résultat est lié à l'absence de propagation d'ondulation liquide entre les lignes principales sur l'ensemble de la fenêtre de mesure (**Figure V.5.b - région I et II**). La tension de surface plus importante du fluide W-E2 est à l'origine de l'absence de la propagation des ondes comme décrit dans la section V.2.1. Dans les **Figures V.4.a - ligne 6** et **V.4.b - ligne 6,** des maximums locaux sont observés qui correspondent à la fois à la rétention liquide au niveau des creux et aux lignes principales de l'écoulement. La valeur maximale de l'épaisseur du film dans la ligne 6 pour les fluides W-E1 et W-E2 est observée dans la zone finale du graphe qui correspond à l'écoulement du film liquide provenant des 6 tubes du côté.

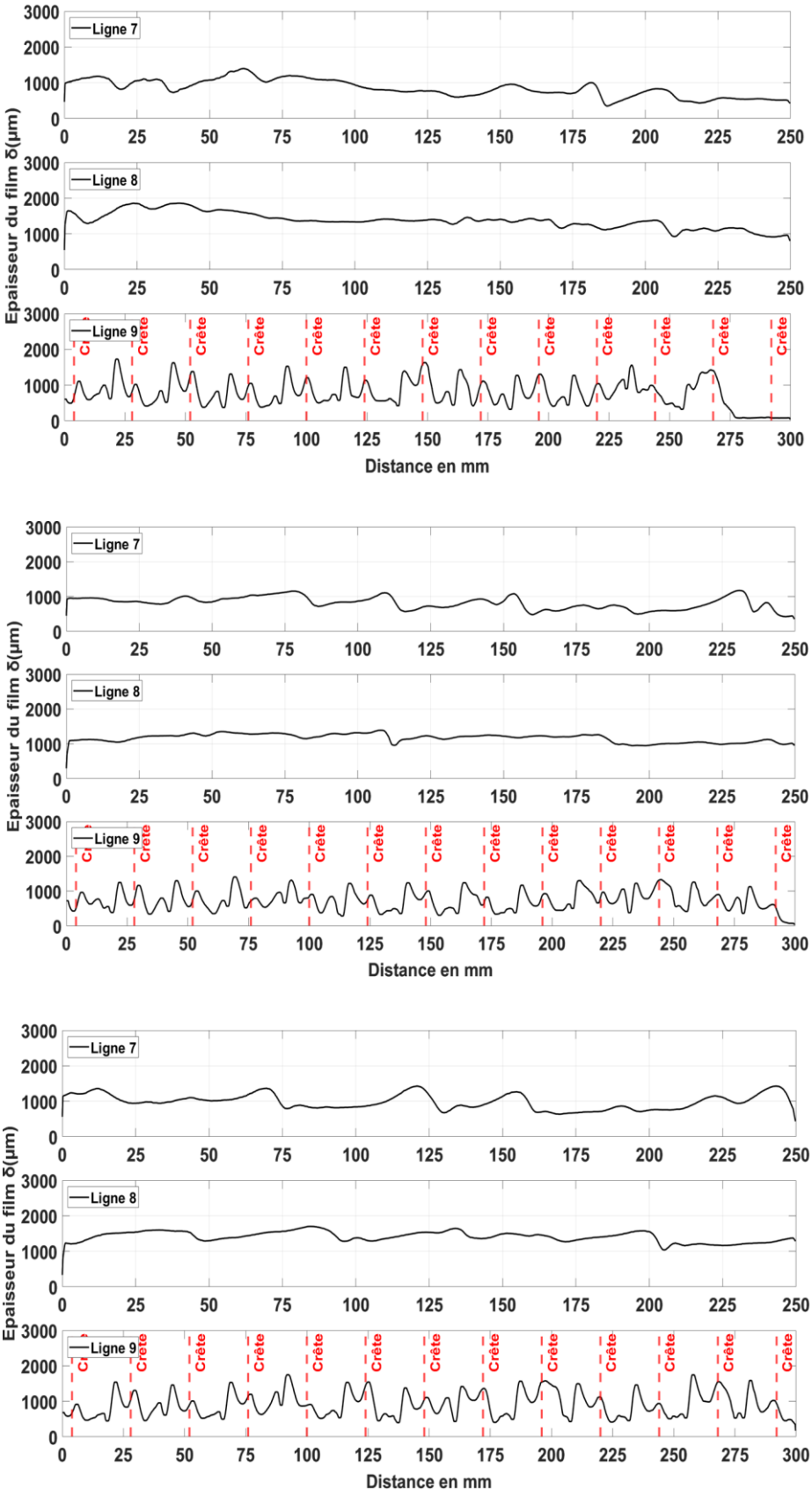


(a) *(b)*

Figure V.5. *Zone I et II de la fenêtre de mesure du (a) : fluide W-E1 (b) : fluide W-E2.*

Pour les fluides visqueux, les lignes étudiées sont présentées dans la **Figure V.3.b**. Ces lignes permettent de suivre l'évolution de l'épaisseur du film le long des crêtes (ligne 7), des creux (ligne 8) et dans la trajectoire perpendiculaire à la direction des corrugations (ligne 9). L'axe des abscisses est dans ce cas en mm puisque la distance est constante pour les trois fluides contrairement aux zones d'étude des fluides W-E1 et W-E2.

Les résultats montrent une tendance de diminution globale de l'épaisseur du film liquide dans les lignes 7 et 8 dans le cas du fluide W-G1 (**Figure V.6.a**). Cette diminution de l'épaisseur du film correspond à une quantité de liquide qui se propage et suit le cheminement des tubes comme le montre la **Figure V.1.c**. Dans le cas des fluides W-G2 et W-G3, l'épaisseur du film liquide est constante dans les lignes 7 et 8 puisque le film liquide suit parfaitement la corrugation de la plaque d'étude et des ondulations liquides se forment au niveau des corrugations de la plaque et se déplacent tout au long des corrugations.



(a)

µ = 5 mPa.s - Θ=90°
Ka = 386 - Re = 10
Q_L = 200 L/h - Q_G = 0 m³/h

(b)

µ = 10 mPa.s - Θ=90°
Ka = 152 - Re = 5
Q_L = 200 L/h - Q_G = 0 m³/h

(c)

µ = 15 mPa.s - Θ=90°
Ka = 90 - Re = 3
Q_L = 200 L/h - Q_G = 0 m³/h

Figure V.6. *Distribution axiale instantanée de l'épaisseur du film pour (a) : W-G1, (b) : W-G2 et (c) : W-G3.*

En augmentant la viscosité du film, l'épaisseur du film liquide augmente au niveau des crêtes et des creux comme illustré sur les **Figures V.6.b**, **V.6.c** et **Figures V.1.d**, **V.1.e** respectivement. Pour l'ensemble des fluides visqueux, la ligne 9 montre la présence de pics d'épaisseur de film liquide entre les crêtes des corrugations ce qui correspond à la rétention liquide au niveau des creux de la plaque.

V.3 Vitesse interfaciale

V.3.1 Influence de la tension de surface

L'estimation de la vitesse interfaciale de l'écoulement en film mince sur plaque Mellapak^{TM} 250Y présente des difficultés majeures, surtout dans le cas des fluides W-E1 et W-E2. Dans le cas de ces fluides, le film liquide suit le cheminement des tubes d'alimentation et l'épaisseur du film varie en fonction de la position du film liquide par rapport aux crêtes et aux creux de la plaque d'étude. Contrairement aux fluides visqueux, la structure de l'écoulement ne présente pas des ondulations liquides qui se propagent sur la surface de la plaque mais des écoulements dont la texture est quasi-constante au cours du temps et qui se déplacent suivant les lignes principales majoritairement (**Figure V.5**) à l'exception de la zone d'alimentation par les 6 tubes sur le côté. Dans cette zone, des ondulations liquides se propagent et ruissèlent aléatoirement sur la plaque d'étude. Dans les zones d'écoulement dépourvues d'ondes il n'y a pas ou peu de gradients d'épaisseur et donc peu de gradient d'intensité de fluorescence. Il est alors difficile d'estimer la vitesse interfaciale. Ainsi, pour les fluides W-E1 et W-E2, l'estimation de la vitesse interfaciale est limitée à une valeur moyenne de la vitesse calculée dans la ligne 5. Pour les fluides visqueux, les mesures de vitesse sont réalisables car la structure de l'écoulement présente des ondulations liquides sur les zones d'étude et spécifiquement au niveau des crêtes et des creux.

***Tableau V-1** : Vitesse interfaciale moyenne des fluides W-E1 et W-E2 à Q_L = 200L/h – ligne 5.*

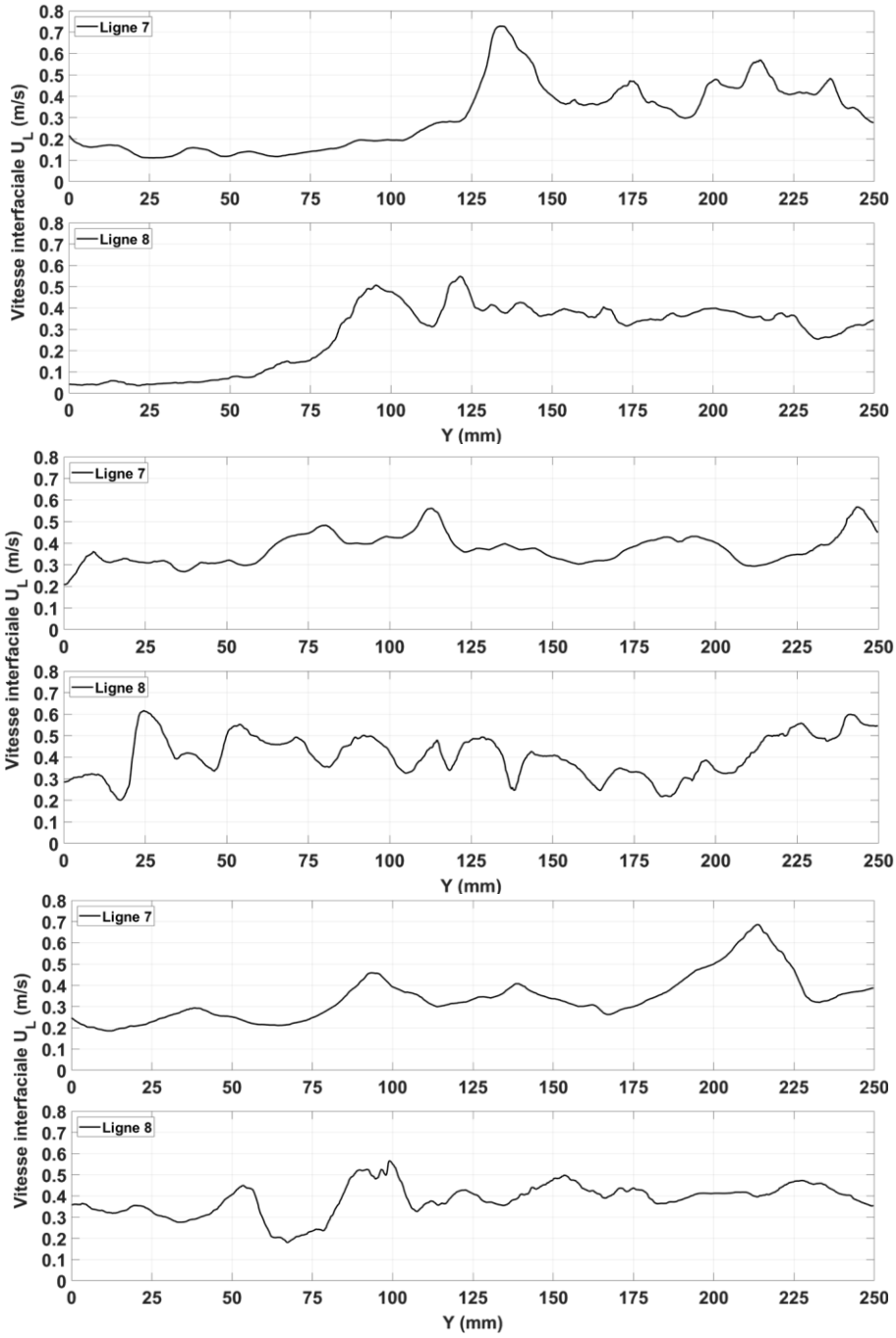
Fluide	W-E1	W-E2
Vitesse interfaciale moyenne en ligne 5 (m/s)	0,46	0,53

Le **Tableau V-1** montre la valeur moyenne de la vitesse interfaciale uniquement dans la ligne 5 où la vitesse du film liquide est quantifiable. Ces résultats montrent que la vitesse interfaciale du film liquide diminue avec la diminution de la tension de surface.

V.3.2 Influence de la viscosité

Pour les fluides visqueux, la **Figure V.6** montre l'absence de fluctuation importante de l'épaisseur du film au niveau des lignes 7 et 8 ce qui pénalise l'étude du lien entre l'épaisseur du film liquide et la vitesse interfaciale. Les **Figures V.7.a**, **V.7.b** et **V.7.c** illustrent l'évolution de la vitesse interfaciale du film liquide dans la ligne 7 (crête) et la ligne 8 (creux) pour les fluides W-G1, W-G2 et W-G3

respectivement. Pour le fluide W-G1, les résultats montrent des faibles valeurs de vitesse entre Y = 0 et Y = 100 mm pour la ligne 7 et entre Y = 0 et Y = 60 mm pour la ligne 8. Ces résultats sont liés à l'absence d'ondulations liquides et par suite à l'absence de fluctuations de l'épaisseur du film ce qui pénalise le calcul de la vitesse par la méthode de flot optique et sous-estime les valeurs de la vitesse interfaciale. En augmentant la viscosité, les résultats des **Figures V.1.d** et **V.1.e** montrent une apparition d'ondulations liquides à des distances plus proches de l'entrée liquide. Les ondes apparaissent pour toutes les valeurs de Y. Ceci est également observé sur les résultats de la vitesse interfaciale qui montre des valeurs élevées même à Y = 0 mm.



(a)

μ = 5 mPa.s - Θ=90°
Ka = 386 - Re = 10
Q_L = 200 L/h - Q_G = 0 m^3/h

(b)

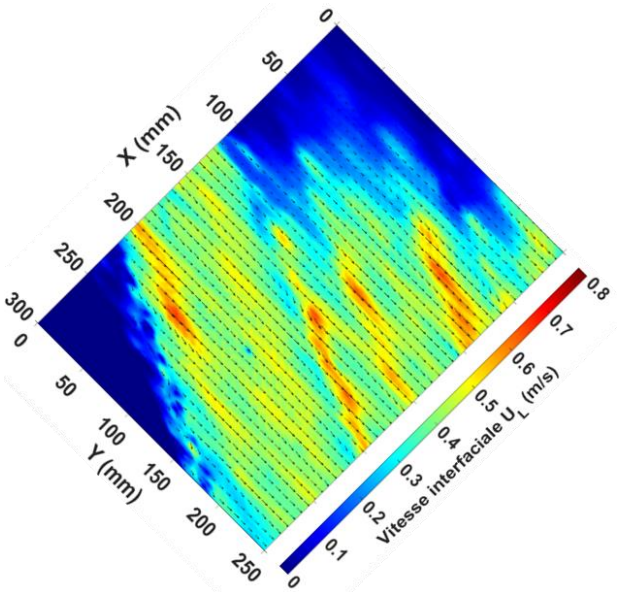
μ = 10 mPa.s - Θ=90°
Ka = 152 - Re = 5
Q_L = 200 L/h - Q_G = 0 m^3/h

(c)

μ = 15 mPa.s - Θ=90°
Ka = 90 - Re = 3
Q_L = 200 L/h - Q_G = 0 m^3/h

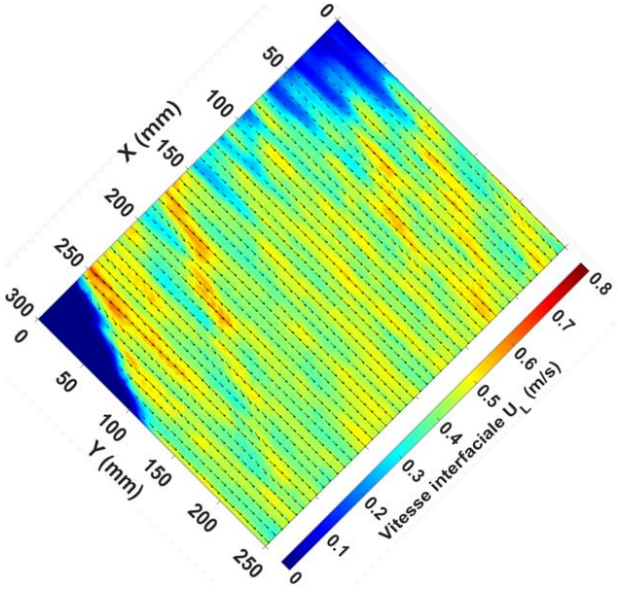
Figure V.7. *Distribution axiale instantanée de la vitesse interfaciale pour (a) : W-G1, (b) : W-G2 et (c) : W-G3.*

En comparant les résultats des trois fluides W-G1, W-G2 et W-G3, il est compliqué de tirer une conclusion claire sur l'effet de la viscosité sur la vitesse interfaciale concernant la plaque Mellapak^{TM} 250Y. Afin de comprendre l'effet de la viscosité, la valeur moyenne de la vitesse interfaciale sur cette plaque est analysée. Les **Figures V.8.a**, **V.8.b** et **V.8.c** montrent le résultat du calcul de la vitesse interfaciale moyenne en utilisant une succession de 1000 images. Ces résultats illustrent l'existence de deux zones en bleu foncé. La première zone située à X = 300 - Y = 0 pour les trois fluides, représente la zone sèche et la deuxième située à X = 0 - Y = 0 mm pour W-G1 et W-G2 qui représente le film liquide sans ondulation illustré dans les **Figures V.1.c** et **V.1.d**. Pour l'ensemble des fluides, la valeur moyenne de la vitesse interfaciale est calculée en négligeant ces deux zones sauf dans le cas du fluide W-G3. Pour ce fluide, la **Figure V.8.c** montre l'absence de la zone bleu foncé en raison de l'apparition des ondulations liquides même à X = 0 et Y = 0 mm comme le montre la **Figure V.1.e** pour cela seule la zone située à X = 300 - Y = 0 mm est négligée



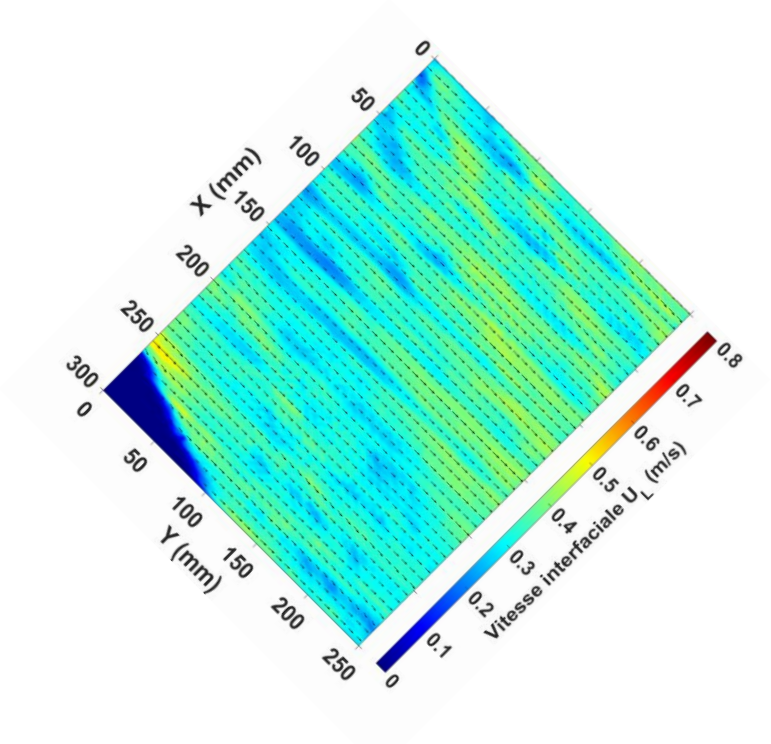
μ = 5 mPa.s - Θ=90°
Ka = 386 - Re = 10
Q_L = 200 L/h - Q_G = 0 m³/h

(a)



μ = 10 mPa.s - Θ=90°
Ka = 152 - Re = 5
Q_L = 200 L/h - Q_G = 0 m³/h

(b)



μ = 15 mPa.s - Θ=90°
Ka = 90 - Re = 3
Q_L = 200 L/h - Q_G = 0 m³/h

(c)

Figure V.8. *Vitesse interfaciale instantanée pour (a) : W-G1, (b) : W-G2 et (c) : W-G3.*

Le **Tableau V-2** ci-dessous présente les valeurs de la vitesse interfaciale moyenne pour les trois fluides W-G1, W-G2 et W-G3.

Tableau V-2 : *Vitesse interfaciale moyenne des fluides W-G1, W-G2 et W-G3.*

Fluide	W-G1	W-G2	W-G3
Vitesse interfaciale moyenne (m/s)	0,45	0,42	0,33

La vitesse interfaciale moyenne diminue avec l'augmentation de la viscosité ce qui est en accord avec les résultats obtenus sur plaque plane et corruguée transversale.

V.4 Impact du débit liquide

Les résultats de la diminution du débit liquide (Q_L = 120 L/h à la place de 200 L/h) sont illustrés dans les **Figures V.9.a**, **V.9.b**, **V.9.c** et **V.9.d** pour les fluide W-E1, W-E2, W-G1 et W-G3 respectivement. En comparant les résultats des **Figures V.1** à débit (Q_L = 200 L/h), on remarque que pour le fluide W-E1, la diminution du débit liquide induit une propagation des ondulations liquides entre les corrugations de la plaque d'étude. Le liquide s'étale donc mieux et l'écoulement n'est plus majoritairement au niveau des lignes principales comme observé à plus fort débit liquide dans la **Figure V.1.a**.

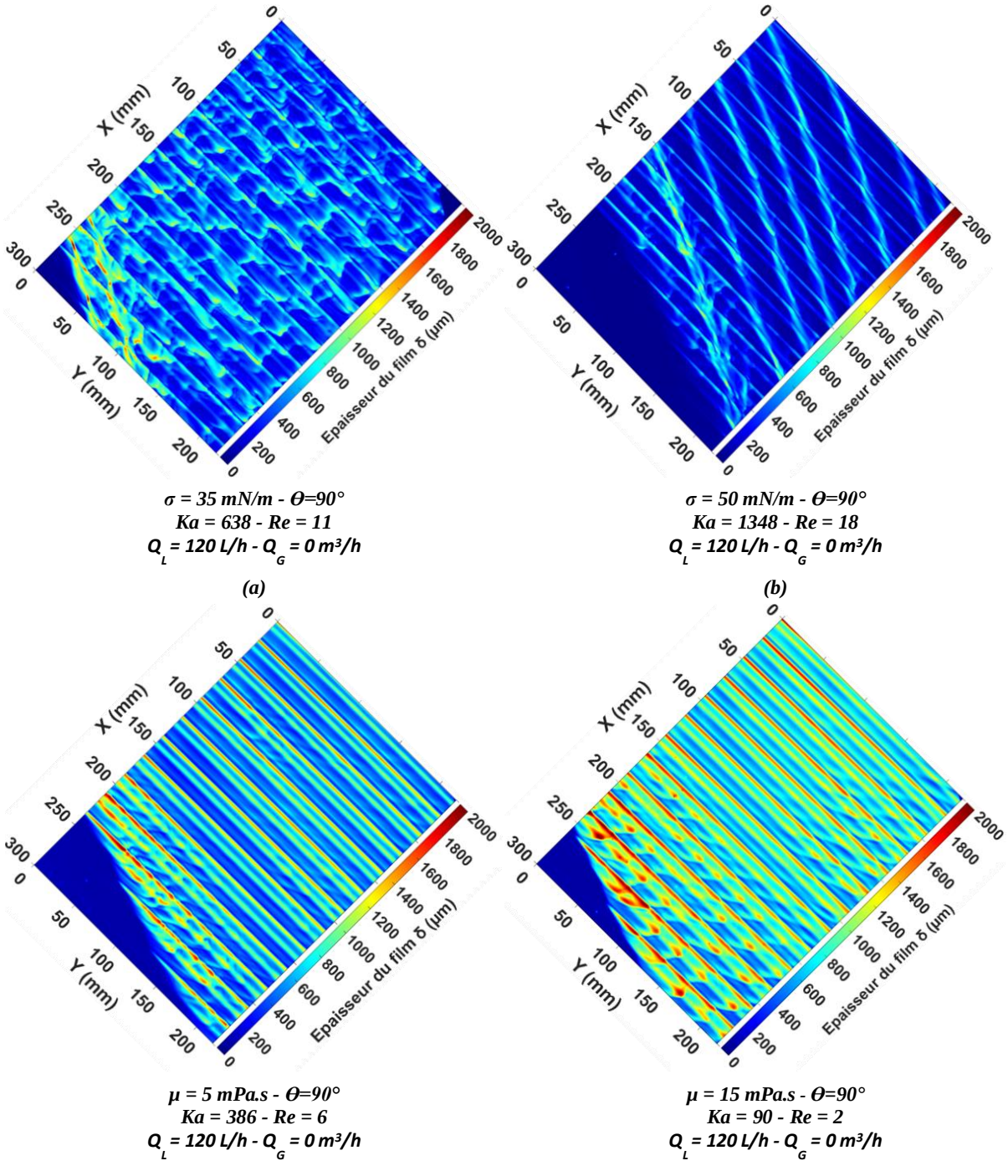


Figure V.9. *Influence de la diminution du débit liquide sur la topologie de l'écoulement du film liquide pour (a) : W-E1 (b) : W-E2 (c) : W-G1 (d) : W-G3.*

Pour le fluide W-E2, la **Figure V.9.b** montre que l'écoulement suit majoritairement les lignes principales comme dans le cas de la **Figure V.1.b**. Ces résultats sont liés à la tension de surface plus élevée dans le cas du fluide W-E2. Cette tension de surface élevé induit des forces intermoléculaires plus grandes et l'éclatement de l'écoulement au niveau des lignes principales nécessiterait une diminution de la tension de surface. Les résultats montrent également que la diminution du débit liquide augmente la surface de la zone sèche. Des résultats similaires ont été observés dans l'étude de Liao et al. (2022) qui

ont analysé l'influence du débit liquide et de l'angle de corrugation sur les caractéristiques de l'écoulement et spécifiquement l'épaisseur du film liquide sur des géométries corruguées.

Pour les fluides visqueux, les résultats illustrés dans les **Figures V.9.c** et **V.9.d** montrent que la diminution du débit liquide amortit la fréquence des ondes liquides. À la différence des résultats illustrés dans les **Figures V.1.c** et **V.1.e**, à faible débit l'écoulement suit les corrugations de la plaque solide. Une rétention importante du film liquide est observée dans les creux sauf au niveau des tubes d'alimentation du côté. Elle est liée à la pente inclinée de 45°des corrugations. Au niveau des tubes d'alimentation, le film liquide arrive à une vitesse élevée ce qui induit l'apparition des ondes liquides malgré la viscosité élevée.

V.5 Coefficient de transfert côté liquide

Dans cette partie, la mise en œuvre de la méthode de mesure de transfert de matière locale et globale est expliquée. Cependant, la méthode de mesure locale n'ayant pas abouti, la présentation ne porte ainsi que sur les difficultés rencontrées.

En revanche, La méthode globale permet d'étudier l'impact du contre-courant de gaz, de la vitesse du film liquide et des propriétés physico-chimiques sur le coefficient de transfert côté liquide.

V.5.1 Transfert de matière local

Validation de la technique

L'estimation du transfert de matière local représente un paramètre clé dans l'étude des écoulements en film mince. A notre connaissance, cette étude locale du transfert de matière et de l'estimation du coefficient de transfert côté liquide en utilisant la méthode de temps de vie de fluorescence représente la première tentative d'application sur une large fenêtre de mesure, dans le domaine des écoulements liquides en film mince ayant une structure et une épaisseur de film variable. La fluctuation de l'épaisseur du film et de la structure de l'écoulement complexifie l'application des méthodes classiques (LIF-O_2 et colorimétrie) pour estimer le transfert de matière à l'échelle locale sur l'ensemble de la fenêtre de mesure. L'avantage de la méthode de temps de vie de fluorescence est qu'elle est indépendante de l'épaisseur du film liquide comme décrit dans la section II.3.1.

Le choix a été de réaliser les premiers essais de mesure du temps de vie de fluorescence sur la plaque plane qui représente la géométrie la plus simple pour ensuite passer à la plaque Mellapak^{TM} 250Y. L'objectif de ces essais était de valider la méthode sur une large fenêtre de mesure (100×100 mm). Pour cette validation, le fluide utilisé est l'eau dans lequel la molécule de complexe de ruthénium Dichlorotris(1, 10-phenanthroline)ruthénium (II) $C_{36}H_{26}Cl_2N_6Ru$ est dissoute à une concentration de 50 mg/L. Le choix du fluide est basé sur les résultats issus de la littérature (Varchola et al., 2014) sur le temps de vie du complexe de ruthénium dissout dans un fluide modèle dans les mêmes conditions

opératoires que notre étude (T=21°C et P = 1 atm). La procédure de validation consiste en une estimation du temps de vie de fluorescence à une concentration connue sur chaque pixel de la fenêtre de mesure. Selon Varchola et al. (2014), la valeur de temps de vie à T = 21°C et P = 1 atm et à concentration constante d'oxygène dans l'eau à l'équilibre avec l'air ambiant est estimée à τ =500 ns. Dans le cas idéal, cette valeur de temps de vie doit être égale sur chaque pixel de la fenêtre de mesure dans des conditions de saturation avec la phase gaz quelle que soit l'épaisseur du film liquide.

Limitation de la méthode

Les premières mesures de temps de vie sont effectuées à θ = 2° et à un débit liquide Q_L = 15 L/h afin de créer un écoulement de film liquide d'épaisseur constante. Les résultats ont montré une homogénéité de la valeur de temps de vie sur plus de 90% des pixels de la fenêtre de mesure (**Figure V.10**). La valeur de temps de vie moyenne (τ = 505) est similaire à celle de la littérature (Varchola et al., 2014) à τ = 500 ns. La seconde étape de la procédure de validation est de réaliser des expériences en présence des ondulations liquides et par suite des fluctuations de l'épaisseur du film liquide dans la fenêtre de mesure.

Afin de générer des ondulations liquides, une augmentation du débit liquide et de l'inclinaison de la plaque d'étude est appliquée. Les **Figures V.11.a** et **V.11.b** illustrent les images en niveau de gris de l'écoulement et du temps de vie calculé par le logiciel pour ce même écoulement. Ces résultats montrent une variation du temps de vie de fluorescence en fonction de l'intensité de fluorescence ce qui est en désaccord avec le principe de cette méthode. En effet, le temps de vie de fluorescence est un paramètre indépendant des variations de l'épaisseur du film liquide. Cependant, ces résultats montrent des valeurs hétérogènes du temps de vie de fluorescence malgré la valeur constante de la concentration en oxygène dans le film liquide.

Afin de comprendre l'origine de ce problème, plusieurs voies de correction ont été étudiées et les paramètres intrinsèques au logiciel de calcul de temps de vie, de l'éclairage et de la caméra ont été modifiés afin de trouver l'origine de cette hétérogénéité. Comme décrit dans la section III.5.1 le logiciel NIS-elements AR.5.30.0 de Nikon qui est utilisé pour le calcul automatique du temps de vie de fluorescence nécessite l'acquisition de 4 images au minimum afin de créer une sinusoïde pour chaque pixel de la fenêtre de mesure similaire à celle présentée dans la **Figure II.13**.

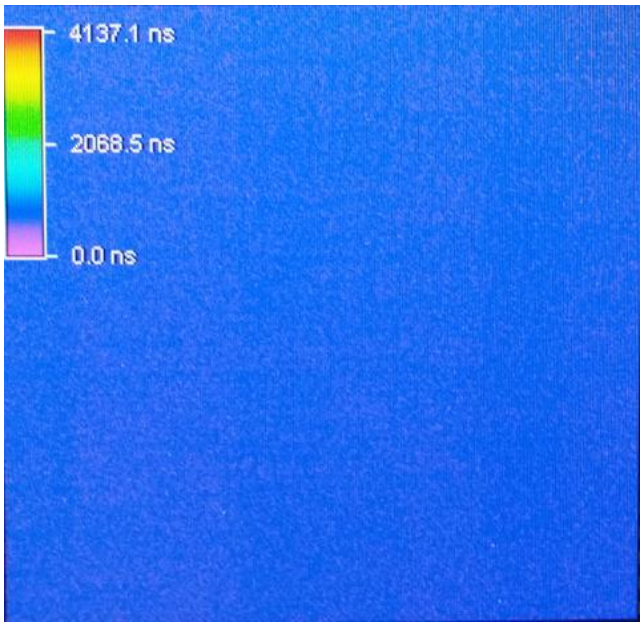
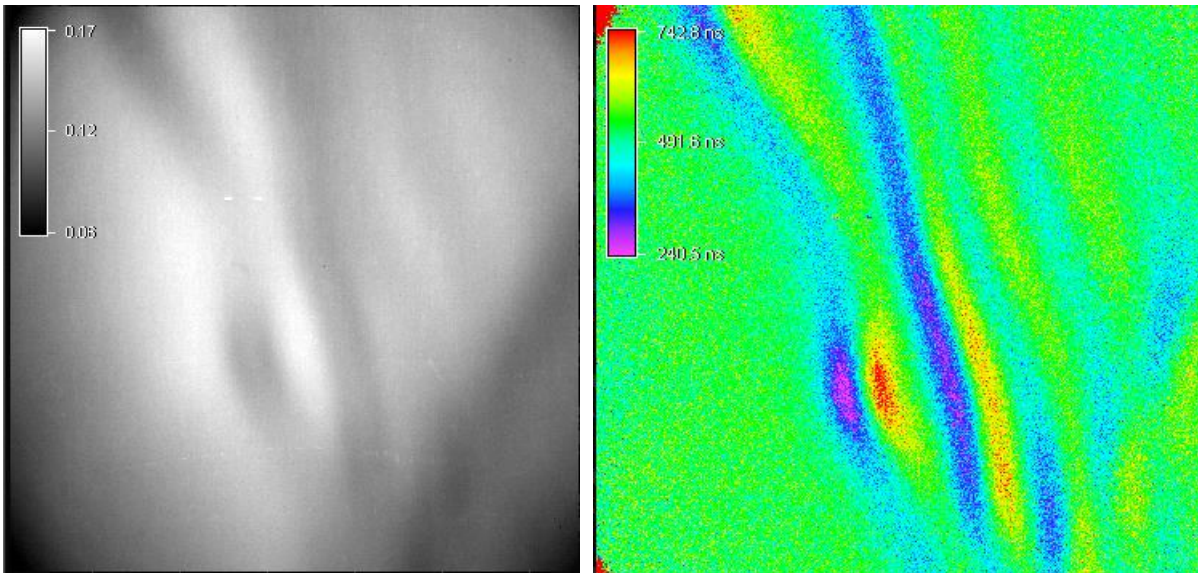


Figure V.10. *Distribution du temps de vie de fluorescence dans la fenêtre de mesure (100×100 mm) en utilisant l'eau comme fluide.*

Le temps pour enregistrer ces 4 images est de 32 ms (selon PCO AG, fournisseurs de la caméra et du système de mesure de temps de vie de fluorescence). S'ajoute à ce temps, le temps d'intégration minimal du système qui est de 5 ms ce qui implique un temps total de 37 ms pour l'acquisition des 4 images nécessaires pour la construction de la sinusoïde. L'intensité enregistrée pendant ce temps total doit correspondre à une même structure de l'écoulement, ce qui signifie que pendant les 37 ms, le déplacement de l'ondulation liquide présente dans la fenêtre de mesure doit être très faible afin de considérer que la luminosité est constante entre les 4 images, ce qui n'est vraisemblablement pas le cas. En 37 ms, le déplacement ne peut pas être considéré comme faible.

Afin de confirmer ce constat, une bulle d'air est générée dans l'écoulement et l'acquisition des 4 images est effectuée au moment du passage de cette bulle. L'image moyenne en niveau de gris (**Figure V.12**) illustre deux bulles d'air qui sont collées l'une à l'autre. Cependant, en réalité, l'écoulement ne présente qu'une seule bulle d'air et le doublement correspond à des images qui sont enregistrées dans les deux prises avec un Δt qui sépare les deux images. Pendant ce Δt, la bulle d'air s'est déplacée et un écart important de l'intensité au niveau des pixels correspondant à la bulle d'air est détecté par la caméra et par la suite le logiciel créé une sinusoïde qui ne correspond pas à la même structure d'écoulement.



(a) ***(b)***

Figure V.11. *Distribution du (a) : niveau de gris moyen et (b) : le temps de vie de fluorescence en utilisant l'eau comme fluide.*

L'usage de 4 images minimum pour construire la sinusoïde est un paramètre intrinsèque au logiciel de calcul de temps de vie. Dans la configuration actuelle du logiciel et selon les fournisseurs, il n'est pas possible de diminuer le nombre d'images nécessaires ou le temps total d'acquisition de ces 4 images (37 ms). Afin de résoudre ce problème, la solution qui peut être envisagée est d'adapter le logiciel afin de minimiser le temps nécessaire pour l'acquisition de ces 4 images. Cette adaptation nécessite la construction d'un logiciel personnalisé qui n'a pas pu être réalisée à ce stade.

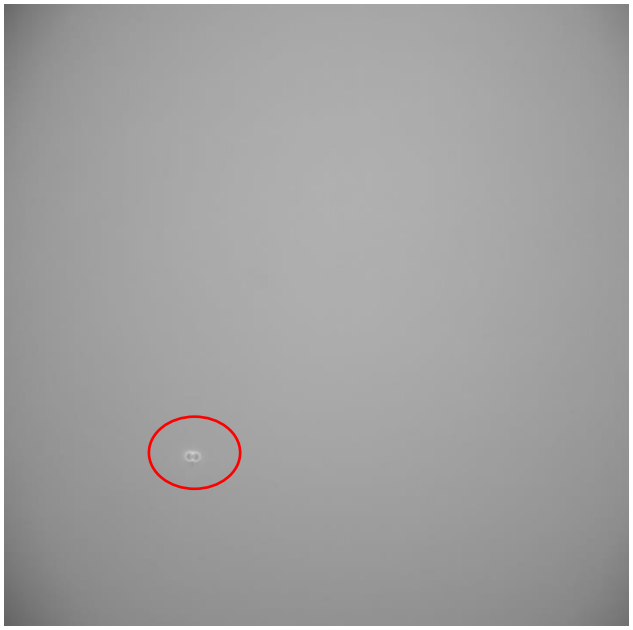


Figure V.12. *Distribution du niveau de gris moyen avec présence de bulle d'air.*

V.5.2 Transfert de matière global

Dans cette partie une étude de l'impact de la vitesse liquide et des propriétés physico-chimiques sur le coefficient de transfert de matière global côté liquide est effectuée. Ce paramètre est déterminé par la mesure de la teneur en oxygène dans le liquide à l'entrée et à la sortie de la plaque d'étude comme présenté dans la section **III.5.2**. Les mesures sont réalisées avec la plaque Mellapak™ 250Y. Pour estimer le coefficient de transfert global côté liquide, $K_L a$, la méthode d'absorption d'oxygène est utilisée. Grâce au sparger d'azote gazeux dans le réservoir liquide, le signal de concentration en oxygène à l'entrée est réduit de 500 mV (± 50 mV selon le fluide d'étude) à 50 mV (± 5 mV). La plaque est maintenue à la verticale (θ = 90°) pour l'ensemble des expériences. Le point de mesure à l'entrée correspond à la mesure dans le réservoir liquide. Afin de vérifier que le signal à la sortie des tubes d'alimentation est égal au signal dans le réservoir liquide, des mesures périodiques sont effectuées à la sortie des tubes d'alimentation. Le **Tableau V-3** montre un exemple des mesures à la sortie des tubes et la valeur dans le réservoir pour le fluide W-G1. Les 10 tubes verticaux (**Figure III.5**) sont numérotés de gauche à droite et les 6 tubes du côté son numérotés du haut vers le bas et son présentés dans le tableau ci-dessous en rose et en vert respectivement.

***Tableau V-3** : Valeur du signal en mV mesuré à la sortie de chaque tube d'alimentation liquide et la mesure dans le réservoir.*

Point de mesure	Tube 1	Tube 3	Tube 5	Tube 7	Tube 9	Tube 1	Tube 3	Tube 5	Réservoir
Signal (± 5mV)	51	50	49	52	54	48	52	50	50

Ce tableau montre que les valeurs du signal sont approximativement identiques tant au niveau des tubes que dans le réservoir liquide à l'incertitude de mesure près (± 5 mV). Pour le calcul de $K_L a$ (**Eq. III.7**), les termes de concentration (C_{in}, C_{out} et C^*) sont remplacés par les signaux (S_{in}, S_{out} et S^*) mesurés par la sonde en mV (**Eq. V.3**) ; les signaux étant proportionnels à la concentration, cela ne change pas la valeur du rapport présent dans l'équation.

$$K_L a = \frac{U_L}{H} ln\left(\frac{S_{in} - S^*}{S_{out} - S^*}\right) \qquad \textit{Eq. V.3}$$

Dans cette équation, U_L (m/s) représente la vitesse interfaciale moyenne du film liquide et H (m) la distance longitudinale comme illustré dans la **Figure III.12**.

Impact du contre-courant gaz

L'objectif de cette partie est d'étudier l'impact de la vitesse du débit du contre-courant gaz sur le coefficient de transfert côté liquide $K_L a$. Dans cette partie, il est possible de réaliser des expériences à contre-courant puisque ces mesures de transfert de matière sont réalisées indépendamment des

mesures de l'épaisseur du film et de la vitesse interfaciale et par conséquent la contrainte des gouttelettes liquides sur la fenêtre de mesure ne pose pas un problème pour ces mesures.

L'air ambiant (21 % en oxygène) provenant du compresseur du laboratoire est envoyé en contre-courant. Le système est parfaitement isolé afin d'éviter toutes les fuites possibles dans le système et d'assurer une seule sortie du flux d'air au niveau des tubes d'alimentation. Le système utilisé permettant de confiner le contre-courant gaz a été illustré en **Figure III.13**.

La **Figure V.13** montre la variation de $K_L a$ pour W-E1, W-E2, W-G1 et W-G3 dans les mêmes conditions opératoires (Q_L = 200 L/h et θ = 90°) mais à différentes vitesses de gaz. Ces résultats montrent que le signal est constant quelle que soit la valeur de la vitesse du contre-courant gaz. Un effet négligeable sur le coefficient de transfert côté liquide est observé pour l'ensemble des fluides. Ces résultats sont en accord avec les travaux de recherche qui ont estimé négligeable la dépendance de $K_L a$ par rapport à la vitesse du flux de gaz (Brunazzi & Paglianti, 1997).

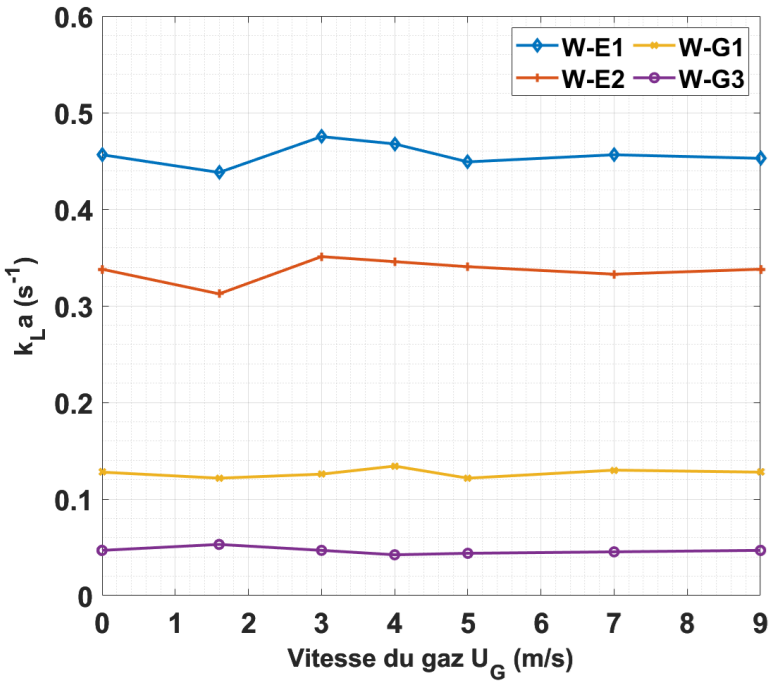


Figure V.13. *Variation de $k_L a$ en fonction de la vitesse du contre-courant gaz.*

Impact du débit liquide sur $K_L a$

Dans cette section, les expériences sont menées sans contre-courant gaz (U_G = 0 m/s) uniquement sur pour les fluides W-G1 et W-G3 en raison des difficultés observés pour calculer les vitesses interfaciales pour les autres fluides et par suite il était impossible de calculer $K_L a$. Les résultats des fluides illustrés dans la **Figure V.14** montrent comme attendu une augmentation du coefficient de transfert en augmentant la vitesse interfaciale du film liquide pour les fluides W-G1 et W-G3 qui représentent les fluides ayant le plus gros écart de viscosité. Ces résultats sont en accord avec les études expérimentales de Rejl et al. (2017a) qui ont étudié le comportement du coefficient de transfert en phase liquide $K_L a$ en fonction de la vitesse de la phase liquide par la méthode standard de désorption de l'oxygène dans

une colonne à garnissage structuré. Ils ont montré que $K_L a$ augmente avec l'augmentation de la vitesse interfaciale de la phase liquide selon l'équation suivante :

$$K_L a = C_1 {U_L}^{C_2} \qquad \textit{Eq. V.4}$$

Dans cette équation, U_L représente la vitesse interfaciale liquide, C_1 et C_2 des paramètres constants. Les valeurs de $K_L a$ obtenues dans notre cas sont inférieures aux valeurs mesurées sur du garnissage Mellapak™ 250Y (Rejl et al. 2017a), en raison de la géométrie plus complexe du Mellapak™ 250Y et de la présence des points de contacts entre les plaques.

Impact de la viscosité et de la tension de surface du film liquide

Conformément aux attentes, les valeurs de $K_L a$ sont les plus élevées pour le fluide ayant la plus faible viscosité et la plus grande diffusivité de l'oxygène ($D_{E-G} = 3{,}32 \times 10^{-10}\ m^2/s$ et $1{,}80 \times 10^{-10}\ m^2/s$ pour W-G1 et W-G3 respectivement). Le coefficient de diffusivité de l'oxygène dans un mélange eau-glycérol est calculé en se basant sur des sources de la littérature (Grossmann and Winkelmann, 2005; D'Errico et al., 2004; Riede and Schlüder, 1991). Le coefficient de diffusion D_{E-G} (m^2/s) est calculé en fonction de la température T (°C), la viscosité μ (mPa.s) selon l'équation suivante :

$$D_{E-G} = 3{,}14 \times 10^{-10} . T^{0{,}313} . \mu^{-0{,}556} \qquad \textit{Eq. V.5}$$

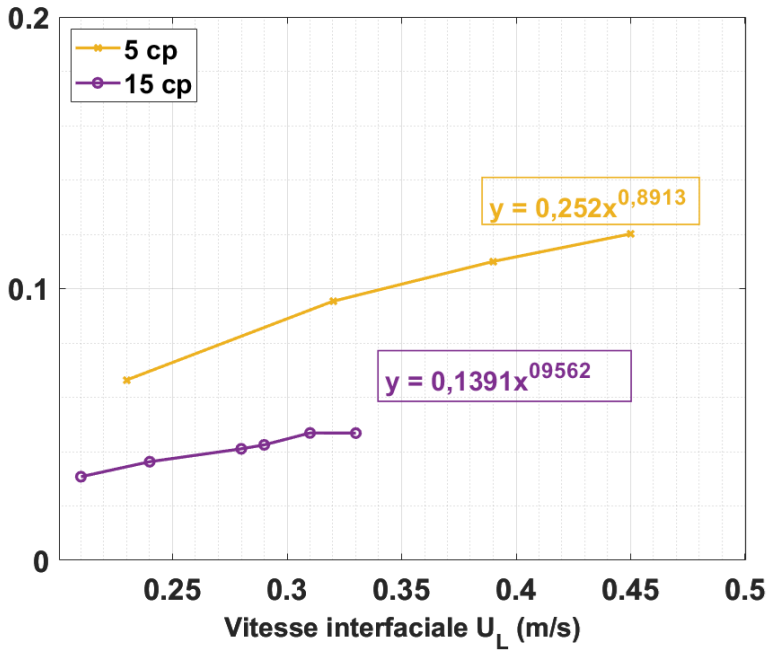


Figure V.14. *Variation de $k_L a$ en fonction de la vitesse interfaciale moyenne.*

Song et al. (2018) ont étudié l'effet de la viscosité sur $K_L a$ en variant la viscosité de 0,8 à 70 mPa.s en ajoutant du glycérol à l'eau. Selon leur étude, la dépendance $K_L a$ par rapport à la viscosité est d'une puissance de -0,4 (**Eq. V.6**) :

$$K_L a = 0{,}14 \eta U_L^{0{,}7} D^{0{,}5} \mu^{-0{,}4} \rho^{0{,}54} \sigma^{-0{,}14} g^{0{,}24} a_p^{0{,}73} \left(\frac{Z}{1{,}8}\right)^{-0{,}54} \qquad \textit{Eq. V.6}$$

Dans cette équation η représente un facteur de correction, U_L (m/s) représente la vitesse interfaciale, D (m^2/s) représente le coefficient de diffusivité de l'oxygène dans un mélange eau-glycérol, μ (mPa.s), ρ (kg/m^3) et σ (N/m) les propriétés du fluide, a_p (m^2/m^3) la surface spécifique du garnissage par unité de volume, Z la hauteur du garnissage et g la gravité. Le **Tableau V-4** illustre l'écart entre les valeurs expérimentales de $K_L a$ obtenues par la méthode d'absorption d'oxygène et les résultats de dépendance de $K_L a$ par rapport à la viscosité obtenus par Song et al. (2018) pour les fluides W-G1 et W-G3. Ces résultats confirment l'hypothèse de l'impact de la viscosité sur $K_L a$ à une puissance de -0,4. Pour les fluides W-E1 et W-E2 et pour un même débit liquide, la **Figure V.13** montre que le coefficient de transfert augmente avec la diminution de la tension de surface ce qui est en accord avec les valeurs de $k_L a$ obtenus par Rejl et al. (2017b). Cette diminution de la tension de surface induit une meilleure propagation du film liquide (cf. section IV.2.1) et par suite des valeurs plus importante de $K_L a$ pour le fluide W-E1.

***Tableau V-4** : Comparaison des résultats expérimentales avec l'hypothèse de dépendance de Song et al. (2018).*

W-G1 W-G3	$\mu_1 = 5$ mPa.s $\mu_2 = 15$ mPa.s	$(K_L a)_{expérimentale1} = 0{,}252 U_L^{0{,}8913}$ $(K_L a)_{expérimentale2} = 0{,}1391 U_L^{0{,}9562}$	$D_1 = 3{,}32 \times 10^{-10}$ m²/s $D_2 = 1{,}80 \times 10^{-10}$ m²/s	
U_L (m/s)		$\frac{(K_L a)_{expérimentale1}}{(K_L a)_{expérimentale2}}$	$\frac{(K_L a)_{théorique1}}{(K_L a)_{théorique2}} \propto (\frac{D_1}{D_2})^{0,5} \times (\frac{\mu_1}{\mu_2})^{-0,4} \left(\frac{\rho_1}{\rho_2}\right)^{0,54}$	|Écart$_{exp\text{-}théo}$|
0,21		2,004	1,913	4,56%
0,23		1,992		3,99%
0,24		1,987		3,72%
0,28		1,967		2,76%
0,29		1,963		2,53%
0,31		1,954		2,11%
0,32		1,950		1,91%
0,33		1,946		1,71%
0,39		1,925		0,64%
0,45		1,908		0,28%

V.6 Discussion et conclusion

Dans ce chapitre, la plaque d'étude est une plaque similaire à une tôle du garnissage Mellapak™ 250Y et qui est placée à la verticale (θ = 90°). Le système d'injection liquide utilisé pour la plaque plane et corruguée transversale est également remplacé par des tubes d'injection liquide. L'hydrodynamique de l'écoulement en film mince sur plaque Mellapak™ 250Y est fortement impacté par le système

d'alimentation et l'angle des tubes d'alimentation. Le fluide sortant des tubes d'alimentation verticale entre en contact avec les corrugations de la plaque d'étude ce qui provoque un amortissement de la force d'inertie du film liquide. Pour les fluides à faible tension de surface et à débit liquide élevé, l'écoulement de film liquide suit le cheminement des tubes d'alimentation avec une propagation et une distribution d'ondulations liquides entre les lignes principales (cas du fluide W-E1). Pour le fluide W-E2, la tension de surface plus élevée induit des forces intermoléculaires plus grande et par conséquent l'absence d'interaction et de propagation d'ondes liquides entre les lignes principales. Pour les fluides visqueux, les résultats montrent que l'écoulement de film liquide suit les corrugations de la plaque d'étude. En augmentant la viscosité du film, les ondulations liquide apparaissent à une position plus proche du point de sortie des tubes d'alimentation. Une rétention importante de film liquide dans les creux de la plaque d'étude est également observée en raison de l'angle des corrugations de la plaque. Pour la vitesse interfaciale, le calcul de la vitesse interfaciale des fluides W-E1 et W-E2 et à débit élevé a été limité dans la zone de l'écoulement provenant des 6 tubes d'alimentation du côté. Les résultats de vitesse interfaciale moyenne pour ces fluides montrent une augmentation de la vitesse interfaciale avec l'augmentation de la tension de surface ce qui a été également observé sur la plaque plane. La vitesse interfaciale moyenne diminue avec l'augmentation de la viscosité du film liquide.

La mesure du transfert de matière locale n'a pas pu être réalisée à cause d'une restriction liée au temps d'acquisition de la caméra dédiée au temps de vie de fluorescence. En revanche, Le transfert de matière global a été estimé sur cette plaque. Les mesures de coefficient de transfert de matière global coté liquide, $K_L a$, ont montré que sa valeur est constante quelle que soit la valeur de vitesse du contre-courant gaz. En revanche, en augmentant la vitesse du film liquide, $K_L a$ augmente dans le cas des fluides visqueux. La dépendance $K_L a$ par rapport à la viscosité est d'une puissance de -0,4 et a été vérifiée pour les fluides visqueux W-G1 et W-G3. Les résultats expérimentaux ont montré qu'une diminution de la viscosité ou de la tension de surface implique une augmentation de $K_L a$

CONCLUSION GENERALE

Les travaux présentés dans ce manuscrit s'inscrivent dans l'objectif d'étudier l'hydrodynamique et le transfert de matière des écoulements en film mince, sur des surfaces complexes proches de celles des garnissages structurés. Plusieurs paramètres jouent un rôle important sur les régimes d'écoulement parmi lesquels : la physico-chimie du solvant, le débit liquide, le débit gaz, la géométrie des plaques et leur inclinaison. Les impacts de ces paramètres ont été étudiés en mesurant l'épaisseur du film, la vitesse interfaciale et le transfert de matière global. Deux fluides, W-E1 et W-E2, caractérisés par une faible tension de surface (σ = 35 mN/m et 50 mN/m) et trois fluides W-G1, W-G2 et W-G3 caractérisés par une viscosité élevée (μ = 5, 10 et 15 mPa.s) ont été utilisés.

Une partie de la bibliographie s'est focalisée sur les méthodes pour mesurer l'hydrodynamique (épaisseur et vitesse interfaciale du film liquide) et le transfert de matière à l'échelle locale. Cela a permis d'orienter notre choix vers des méthodes optiques non-intrusives. L'intensité de fluorescence a été retenue pour les mesures d'épaisseur du film, la méthode de flot optique pour la mesure des vitesses interfaciales et la méthode de temps de vie de fluorescence pour la mesure du transfert de matière. Des mesures globales du transfert de matière (à l'échelle du dispositif) ont également été étudiées. Le système de mesure d'absorption d'oxygène dans l'eau dégazée a été retenu pour déterminer le transfert en phase liquide. Il est en effet très impacté par l'hydrodynamique locale.

Un dispositif expérimental a été réalisé pour recréer un écoulement de type film mince avec ou sans contre-courant gaz. Ce dispositif est principalement constitué de deux parties : les plaques d'étude et le système optique. Trois plaques ont été fabriquées pour faire ressortir le rôle de la géométrie sur l'hydrodynamique du film liquide. La première plaque consiste en une plaque plane de longueur 1200 mm et de largeur 500 mm. Elle permet de se comparer et de se caler par rapport à la littérature. La deuxième plaque présente des corrugations transversales ayant une amplitude de 12 mm et une base de corrugation de 32 mm. Elle constitue une étape intermédiaire avant la troisième plaque de longueur 650 mm et de largeur 450 mm, qui présente une géométrie bien plus complexe. Les corrugations suivent un angle de 45° pour se rapprocher des tôles de garnissage Mellapak^{TM} 250Y, la surface reste lisse et sans performations. Le système optique est composé d'une lampe LED ILM-401B-M-bleu de HARDsoft® Microprocessor Systems et d'une caméra rapide Phantom V9.1. Les techniques de mesure choisies ont été adaptées au dispositif expérimental à travers des modifications techniques (type et position de l'éclairage, adaptation du support solide et de la vitre en verre), des corrections et des calibrations (non-homogénéité de l'éclairage, soustraction du noir de référence, vignettage et absorption du verre, conversion du niveau de gris en épaisseur de film, reconstruction de l'interface de la plaque pour le calcul du flot optique sur plaque corruguée) pour les mesures d'épaisseur de film et de la vitesse interfaciale liées à chaque géométrie de plaque.

Sur la plaque plane (θ = 10° et 20°), l'écoulement présente des instabilités et des vitesses interfaciales plus importantes aux fortes tensions de surface. Pour les fluides les plus visqueux, les ondes capillaires sont amorties et remplacées par des ondes solitaires, l'épaisseur du substrat liquide augmente et la vitesse interfaciale du film diminue. En ajoutant de l'air à contre-courant à faible vitesse de gaz (0 < U_G < 3 m/s), il n'y a pas de variation significative de la structure de l'écoulement ou de la vitesse interfaciale. Ce résultat est cohérent avec la littérature (N. Kofman et al., 2017 ; Vitry 2011). A partir

de U_G = 3 m/s la fréquence des ondes capillaires est atténuée, l'épaisseur maximale augmente et la vitesse interfaciale diminue significativement.

Le passage à la plaque corruguée a nécessité un profond remaniement des processus de traitement d'images. Il a fallu notamment tenir compte de l'impact des corrugations sur la distance entre la paroi et la caméra, et tenir compte des inclinaisons locales pour recalculer les angles d'inclinaison sur chaque pixel, étape essentielle aux calculs de vitesses interfaciales. Sur cette plaque corruguée transversale (θ = 60°) et à fort débit liquide (Q_L = 180 L/h), des vagues déferlantes apparaissent surtout pour le fluide ayant la plus faible tension de surface. Ces vagues possèdent une épaisseur de liquide élevée et une vitesse interfaciale importante. Lorsque la viscosité augmente, la fréquence des vagues et des déferlements diminue, la longueur d'onde des ondulations liquides principales augmente considérablement. À faible débit liquide (Q_L = 80 L/h), le film ruissèle en phase avec les corrugations de la plaque solide, les vagues déferlantes ne sont plus présentes et sont remplacées par une fréquence élevée d'ondes principales. Pour le fluide à tension de surface élevée (W-E2), des ondulations capillaires apparaissent comme dans le cas de la plaque plane. Il n'a pas été possible de mettre du gaz à contre-courant sur la plaque corruguée transversale et la plaque Mellapak™ 250Y. La vitesse du contre-courant de gaz atteint des valeurs importantes au niveau des crêtes des corrugations puisque la distance entre la vitre en verre et les plaques d'étude est minimale à ce niveau. Cette augmentation de vitesse de gaz et la géométrie des plaques provoquent l'apparition des déferlements liquides (déferlantes) ainsi que des épaisseurs de film importantes. Ces phénomènes induisent des projections de gouttes sur la plaque en verre qui perturbent le signal collecté par la caméra sur l'ensemble de la fenêtre de mesure.

Pour la plaque de type Mellapak™ 250Y, le système d'alimentation liquide a été modifié avec 16 tubes d'injection liquide en lieu et place d'une fente alimentant toute la largeur du bord supérieur de la plaque. Les résultats montrent une absence du phénomène de vagues déferlantes contrairement au cas de la plaque corruguée transversale. Pour les fluides à faible tension de surface et à débit liquide élevé, le liquide est confiné au niveau des lignes principales qui représentent le cheminement des tubes. Au niveau de ces lignes principales, la texture de l'écoulement est quasi-constante au cours du temps ce qui complique et sous-estime le calcul de la vitesse interfaciale pour ces structures d'écoulement. Pour cette raison, la majorité des résultats sur la plaque Mellapak™ 250Y sont basées sur des calculs de vitesse interfaciale moyenne par flot optique effectués sur des zones spécifiques de la fenêtre de mesure où il était possible de calculer la vitesse interfaciale. Pour les fluides visqueux, le fluide suit les corrugations de la plaque d'étude. Comme avec la plaque plane, on note une

augmentation de la vitesse interfaciale avec l'augmentation de la tension de surface et la diminution de la viscosité du film. La méthode de temps de vie de fluorescence a été mise en œuvre pour les mesures de transfert de matière local. Ces mesures n'ont pas été concluantes car la méthode est inadaptée aux écoulements instables. Les résultats de temps de vie de fluorescence ont montré une variation du temps de vie en fonction de l'intensité de fluorescence malgré la concentration constante d'oxygène ce qui est désaccord avec le principe de cette méthode. Des pistes d'améliorations ont été identifiées, mais elles n'ont pas pu être mises en œuvre dans le cadre de cette thèse car trop coûteuses et trop risquées. Il a été possible de réaliser des mesures de transfert de matière global. Pour réaliser ces mesures, un contre-courant gaz est nécessaire. Il était possible de réaliser des expériences à contre-courant puisque ces mesures de transfert de matière sont effectuées indépendamment des mesures de l'épaisseur du film et de la vitesse interfaciale et par conséquent la contrainte des gouttelettes liquides sur la fenêtre de mesure ne pose pas de problème. La valeur du coefficient de transfert côté liquide $K_L a$ ne dépend pas de la vitesse du gaz à contre-courant dans la plage testée. L'impact du débit liquide a été estimé sur les valeurs de $K_L a$. Les résultats obtenus montrent que les valeurs de $K_L a$ sont inférieures aux valeurs mesurées sur du vrai garnissage Mellapak™ 250Y (Rejl et al. 2017a). Ces valeurs sont plus faibles en raison de la géométrie plus complexe du Mellapak™ 250Y et de la présence des points de contact entre les plaques. Dans le cas des fluides visqueux, en augmentant la vitesse du film liquide le coefficient de transfert côté liquide $K_L a$ augmente.

Dans cette étude, de nombreuses **perspectives** apparaissent**.** Tout d'abord, il serait intéressant de pouvoir étudier l'impact du cisaillement de l'air à contre-courant sur les phénomènes de dynamique d'ondulation liquide en présence de corrugations et en utilisant des solvants ayant une faible tension de surface et une viscosité élevée. Pour cela il faudrait soit changer de techniques de mesure, soit adapter le dispositif expérimental pour éviter les projections de gouttes sur la plaque en verre. Le plus simple serait d'augmenter la distance entre la plaque et le sommet des corrugations. Toutefois cela augmenterait la surface de passage du gaz, c'est pourquoi le recours à une soufflante gaz plus puissante sera nécessaire pour conserver la gamme de vitesses expérimentales.

Dans les zones d'écoulement dépourvues d'ondes il n'y a pas ou peu de gradients d'épaisseur, et donc peu de gradient d'intensité de fluorescence. Il était alors difficile d'estimer la vitesse interfaciale par la méthode de flot optique. L'application de techniques de mesure de vitesse telles que la PIV ou la PTV pourrait apporter une solution malgré leurs inconvénients (cf. sections II.2.2 et II.2.3).

Mesurer le coefficient de transfert de matière local serait un vrai plus. Des propositions ont été faites par les fournisseurs du système optique (PCO AG). Il s'agirait de réduire le temps d'acquisition des 4 images utilisées pour construire la sinusoïde nécessaire au calcul du temps de vie de fluorescence.

Toutefois, le prix de cette modification est très élevé et le fabricant ne garantit pas les résultats, le risque de ne pas aboutir reste donc élevé.

A plus long terme, il faudrait pouvoir conduire l'étude de l'hydrodynamique locale et du transfert de matière entre un assemblage de deux plaques corruguées similaire au Mellapak^{TM} 250Y. Ces plaques seraient orientées dans des directions opposées avec un angle β pour l'une et 180°- β pour l'autre, et présenteraient des points de contact. La difficulté réside toujours dans les méthodes de mesure qui peuvent être appliquées pour effectuer une telle étude. Cela permettrait de progresser notablement en termes de représentativité des garnissages structurés industriels.

Enfin, la compréhension des variations de l'hydrodynamique locale et du transfert de matière est une brique fondamentale pour améliorer la modélisation des écoulements diphasiques. Les résultats expérimentaux obtenus constitueront une base de données précieuse et incontournable pour la validation de simulations numériques 3D d'écoulements en film mince liquide sur des géométries complexes comme celles testées. A moyen/long terme, la CFD pourrait permettre d'appréhender le comportement des contacteurs de type garnissages structurés, dans lesquels il est très compliqué de conduire des mesures à l'échelle locale.

Références bibliographiques

Åkesjö, A., Vamling, L., Sasic, S., Olausson, L., Innings, F., & Gourdon, M. (2018). On the measuring of film thickness profiles and local heat transfer coefficients in falling films. *Experimental Thermal and Fluid Science*. https://doi.org/10.1016/j.expthermflusci.2018.07.028

Argyriadi, K., Vlachogiannis, M., & Bontozoglou, V. (2006). Experimental study of inclined film flow along periodic corrugations: The effect of wall steepness. *Physics of Fluids*, *18*(1), 012102. https://doi.org/10.1063/1.2163810

Billet, R., & Schultes, M. (1999a). Prediction of mass transfer columns with dumped and arranged packings: Updated summary of the calculation method of Billet and Schultes. *Chemical Engineering Research and Design*, *77*(6), 498–504. https://doi.org/10.1205/026387699526520

Billet, R., & Schultes, M. (1999b). Prediction of Mass Transfer Columns with Dumped and Arranged Packings. *Chemical Engineering Research and Design*, *77*(6), 498–504. https://doi.org/10.1205/026387699526520

Bonilla-Riaño, A., Velasco-Peña, H. F., Bannwart, A. C., Prasser, H. M., & Rodriguez, O. M. H. (2019). Water film thickness measurement system for oil-water pipe flow. *Flow Measurement and Instrumentation*. https://doi.org/10.1016/j.flowmeasinst.2019.02.007

Brunazzi, E., & Paglianti, A. (1997). Liquid-Film Mass-Transfer Coefficient in a Column Equipped with Structured Packings. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, *36*(9), 3792–3799. https://doi.org/10.1021/ie970045h

Brunet, F., Cid, E., Bartoli, A., Bouche, E., Risso, F., & Roig, V. (2013). Image registration algorithm for molecular tagging velocimetry applied to unsteady flow in Hele-Shaw cell. *Experimental Thermal and Fluid Science*, *44*, 897–904. https://doi.org/10.1016/j.expthermflusci.2012.09.026

Chanson, H., & Lee, J.-F. (1995). *Characteristics of Plunging Breaking Waves*. Dept. of Civil Engineering, the University of Queensland.

Charogiannis, A., An, J. S., & Markides, C. N. (2015). A simultaneous planar laser-induced fluorescence, particle image velocimetry and particle tracking velocimetry technique for the investigation of thin liquid-film flows. *Experimental Thermal and Fluid Science*, *68*, 516–536. https://doi.org/10.1016/j.expthermflusci.2015.06.008

Chen, Y., Li, Z., Yang, Y., Jia, J., Liu, C., & Lucquiaud, M. (2019). Simulation of Flooding Phenomenon in Packed Column using Electrical Capacitance Tomography. *IST 2019 - IEEE International Conference on Imaging Systems and Techniques, Proceedings*. https://doi.org/10.1109/IST48021.2019.9010204

Copigneaux, P. (2016). Distillation . Absorption - Colonnes garnies Distillation . Absorption Colonnes garnies, *33*(0).

D'Errico, G., Ortona, O., Capuano, F., & Vitagliano, V. (2004). Diffusion coefficients for the binary system glycerol + water at 25 °C. a velocity correlation study. *Journal of Chemical and Engineering Data*, *49*(6), 1665–1670. https://doi.org/10.1021/je049917u

Deendarlianto, Ousaka, A., Indarto, Kariyasaki, A., Lucas, D., Vierow, K., … Hogan, K. (2010). The effects of surface tension on flooding in counter-current two-phase flow in an inclined tube. *Experimental Thermal and Fluid Science*, *34*(7), 813–826. https://doi.org/10.1016/j.expthermflusci.2010.01.010

Deqing Sun, S. R. (2008). Secrets of Optical Flow Estimation and Their Principles. *Journal of Fluid*

Mechanics, *614*, 253–291. https://doi.org/10.1017/S0022112008003273

Dierckx, P. (1994). *Curve and Surface Fitting with Splines. Mathematics of Computation* (Vol. 63). https://doi.org/10.2307/2153590

Dietrich, N., Loubière, K., Jimenez, M., Hébrard, G., & Gourdon, C. (2013). A new direct technique for visualizing and measuring gas-liquid mass transfer around bubbles moving in a straight millimetric square channel. *Chemical Engineering Science*. https://doi.org/10.1016/j.ces.2013.03.041

Doran, P. M. (2013). *Laser Doppler Velocimetry*. *Bioprocess Engineering Principles* (Second Edi). https://doi.org/10.1016/c2009-0-22348-8

Drosos, E. I. P., Paras, S. V., & Karabelas, A. J. (2004). Characteristics of developing free falling films at intermediate Reynolds and high Kapitza numbers. *International Journal of Multiphase Flow*, *30*(7-8 SPEC. ISS.), 853–876. https://doi.org/10.1016/j.ijmultiphaseflow.2004.03.003

Ershov, A. (2015). Automated Analysis of Time-resolved X-ray Data using Optical Flow Methods. *Der Fakult¨at F¨ur Informatik Des Karlsruher Instituts F¨ur Technologie (KIT)*, (13 November 2015). https://doi.org/DOI: 10.5445/IR/1000055519

Farnebäck, G. (2002). *Polynomial Expansion for Orientation and Motion Estimation*. *Linköping Studies in Science and Technology. Dissertations*.

Frisk, D. P., & Davis, E. J. (1972). The enhancement of heat transfer by waves in stratified gas-liquid flow. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, *15*(8), 1537–1552. https://doi.org/10.1016/0017-9310(72)90009-9

Fukano, T. (1998). Measurement of time varying thickness of liquid film flowing with high speed gas flow by a constant electric current method (CECM). *Nuclear Engineering and Design*, *184*(2–3), 363–377. https://doi.org/10.1016/S0029-5493(98)00209-X

Georgantaki, A., Vatteville, J., Vlachogiannis, M., & Bontozoglou, V. (2011). Measurements of liquid film flow as a function of fluid properties and channel width: Evidence for surface-tension-induced long-range transverse coherence. *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics*, *84*(2), 026325. https://doi.org/10.1103/PHYSREVE.84.026325/FIGURES/5/MEDIUM

Gerke, S. J., & Repke, J. U. (2019). Experimental investigations of the fluid dynamics in liquid falling films over structured packing geometry. *Chemical Engineering Research and Design*, *147*, 634–643. https://doi.org/10.1016/j.cherd.2019.05.043

Goren, S. L., & Mani, R. V. S. (1968). Mass transfer through horizontal liquid films in wavy motion. *AIChE Journal*, *14*(1), 57–61. https://doi.org/10.1002/AIC.690140113

Gosset, A., & Buchlin, J. M. (2007). Jet wiping in hot-dip galvanization. *Journal of Fluids Engineering, Transactions of the ASME*, *129*(4), 466–475. https://doi.org/10.1115/1.2436585

Grossmann, T., & Winkelmann, J. (2005). Ternary Diffusion Coefficients of Glycerol + Acetone + Water by Taylor Dispersion Measurements at 298.15 K. *Chemical Engineering*, 1396–1403.

Han, Y., Shikazono, N., & Kasagi, N. (2011). Measurement of liquid film thickness in a micro parallel channel with interferometer and laser focus displacement meter. *International Journal of Multiphase Flow*. https://doi.org/10.1016/j.ijmultiphaseflow.2010.08.010

Horn, B. K. P., & Schunck, B. G. (1981). Determining optical flow. *Artificial Intelligence*. https://doi.org/10.1016/0004-3702(81)90024-2

Hu, H., Saga, T., Kobayashi, T., Okamoto, K., & Taniguchi, N. (1998). Evaluation of the cross correlation method by using PIV standard images. *Journal of Visualization*, *1*(1), 87–94. https://doi.org/10.1007/BF03182477

IAE. (2021). IAE. Retrieved from https://www.iea.org/reports/global-energy-review-2021/co2-emissions

Janzen, A., Steube, J., Aferka, S., Kenig, E. Y., Crine, M., Marchot, P., & Toye, D. (2013a). Investigation of liquid flow morphology inside a structured packing using X-ray tomography. *Chemical Engineering Science*. https://doi.org/10.1016/j.ces.2013.08.035

Janzen, A., Steube, J., Aferka, S., Kenig, E. Y., Crine, M., Marchot, P., & Toye, D. (2013b). Investigation of liquid flow morphology inside a structured packing using X-ray tomography. *Chemical Engineering Science*, *102*, 451–460. https://doi.org/10.1016/j.ces.2013.08.035

Johnson, M. F. G., Schluter, R. A., & Bankoff, S. G. (1998). Fluorescent imaging system for global measurement of liquid film thickness and dynamic contact angle in free surface flows. *Review of Scientific Instruments*, *68*(11), 4097. https://doi.org/10.1063/1.1148352

Karapantsios, T. D., & Karabelas, A. J. (1995). Longitudinal characteristics of wavy falling films. *International Journal of Multiphase Flow*, *21*(1), 119–127. https://doi.org/10.1016/0301-9322(94)00048-O

Kawas, B., Mizzi, B., Dejean, B., & Rouzineau, D. (2021). Chemical Engineering Research and Design Design and conception of an innovative packing for separation column – Part II : Design and characterization of a wire based packing. *Chemical Engineering Research and Design*, *169*, 189–203. https://doi.org/10.1016/j.cherd.2021.03.019

Kim, J., & Kim, M. H. (2006). A photochromic dye activation method for measuring the thickness of liquid films. *Bulletin of the Korean Chemical Society*, *39*(6), 497–504. https://doi.org/10.1016/j.measurement.2005.12.013

Kofman, N., Mergui, S., & Ruyer-Quil, C. (2017). Characteristics of solitary waves on a falling liquid film sheared by a turbulent counter-current gas flow. *International Journal of Multiphase Flow*, *95*, 22–34. https://doi.org/10.1016/j.ijmultiphaseflow.2017.05.007

Kofman, Nicolas. (2014). Films liquides tombants avec ou sans contre - écoulement de gaz : application au problème de l'engorgement dans les colonnes de distillation, *391*.

Lel, V. V, Al-Sibai, A. F., Leefken, A. A., & Renz, A. U. (2005). Local thickness and wave velocity measurement of wavy films with a chromatic confocal imaging method and a fluorescence intensity technique. https://doi.org/10.1007/s00348-005-0020-x

Liao, J., Xue, P., Jin, L., Zhao, M., Zhang, N., & Liu, J. (2022). Optimization of Corrugated Sheet Packing Structure Based on Analysis of Falling Film Flow Characteristics. *Sustainability (Switzerland)*, *14*(10), 1–19. https://doi.org/10.3390/su14105861

Liu, J., & Gollub, J. P. (1994). Solitary wave dynamics of film flows. *Physics of Fluids*, *6*(5), 1702–1712. https://doi.org/10.1063/1.868232

Lu, C., Jiang, S. Y., & Duan, R. Q. (2016). Wave Characteristics of Falling Film on Inclination Plate at Moderate Reynolds Number. *Science and Technology of Nuclear Installations*, *2016*. https://doi.org/10.1155/2016/6586097

Lucas, B. D., & Kanade, T. (1981). *An Iterative Image Registration Technique with an Application to Stereo Vision*.

Mackowiak, J. (2010). *Fluid Dynamics of Packed Columns*.

Makarytchev, S. V., Langrish, T. A. G., & Prince, R. G. H. (2001). Thickness and velocity of wavy liquid films on rotating conical surfaces. *Chemical Engineering Science*, *56*(1), 77–87. https://doi.org/10.1016/S0009-2509(00)00428-0

Markus Raffel, Christian E. Willert, Steven T. Wereley, J. K. (2007). Particle Image Velocimetry: A Practical Guide. Retrieved February 27, 2020, from https://books.google.fr/books?id=fdKd50rzfuMC&pg=PA179&dq=Guiding+Principles+for+Use+of+PIV&hl=en&sa=X&ved=0ahUKEwj39KLkt_HnAhWL2BQKHd8lDRwQ6AEIMTAB#v=onepage&q=Guiding Principles for Use of PIV&f=false

Mendez, M. A., Németh, L., & Buchlin, J. M. (2016). Measurement of Liquid Film Thickness via Light Absorption and Laser Tomography. *EPJ Web of Conferences*, *114*, 1–11. https://doi.org/10.1051/epjconf/201611402072

Miyara, A. (1999). Numerical analysis on flow dynamics and heat transfer of falling liquid films with interfacial waves. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, *35*(4), 298–306. https://doi.org/10.1007/s002310050328

Moßhammer, M., Scholz, V. V., Holst, G., Kühl, M., & Koren, K. (2019). Luminescence Lifetime Imaging of O2 with a Frequency-Domain-Based Camera System. *Journal of Visualized Experiments : JoVE*, (154). https://doi.org/10.3791/60191

Mudawar, I., & Houpt, R. A. (1993). Measurement of mass and momentum transport in wavy-laminar falling liquid films. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, *36*(17), 4151–4162. https://doi.org/10.1016/0017-9310(93)90077-J

Münsterer, T., & Jähne, B. (1998). LIF measurements of concentration profiles in the aqueous mass boundary layer. *Experiments in Fluids*, *25*(3), 190–196. https://doi.org/10.1007/s003480050223

Njifenju, A. K., Bico, J., Andrès, E., Jenffer, P., & Fermigier, M. (2013). Experimental investigation of liquid films in gravity-driven flows with a simple visualization technique. *Experiments in Fluids*, *54*(5). https://doi.org/10.1007/s00348-013-1506-6

Nusselt. (1916). Nusselt, W., 1916. Die Oberflachencondensation des Wasserdampfes. VDI 60, 541–569., *60*, 541–569.

P.L. Kapitza, S. P. K. (1965). WAVE FLOW OF THIN LAYERS OF A VISCOUS FLUID. In *Collected Papers of P.L. Kapitza* (pp. 662–709). Elsevier. https://doi.org/10.1016/b978-0-08-010973-2.50013-6

Park, C. D., & Nosoko, T. (2003). Three-Dimensional Wave Dynamics on a Falling Film and Associated Mass Transfer. *AIChE Journal*, *49*(11), 2715–2727. https://doi.org/10.1002/aic.690491105

Pascal, A., Raynal, L., François, A., Meyer, M., Prevost, M., & Rouzineau, D. (2010). Mass transfer and hydrodynamic characteristics of new carbon carbon packing : Application to CO2 post-combustion capture. *Chemical Engineering Research and Design*, *9*(September), 1658–1668. https://doi.org/10.1016/j.cherd.2010.09.023

Patnaik, V., & Perez-Blanco, H. (1996). Roll waves in falling films: An approximate treatment of the velocity field. *International Journal of Heat and Fluid Flow*, *17*(1), 63–70. https://doi.org/10.1016/0142-727X(95)00075-2

Qiu, H., Wang, X., & Hong, F. (2005). Fringe probing of liquid film thickness of a plug bubble in a micropipe Related content Measurements of interfacial film thickness for immiscible liquid-liquid slug/droplet flows Fringe probing of liquid film thickness of a plug bubble in a micropipe. *Meas. Sci. Technol*, *16*, 594–600. https://doi.org/10.1088/0957-0233/16/2/037

Raynal, L., & Tebianian, S. (2020). Captage du CO2 - Technologie pour la transition énergétique.

Ressources Énergétiques et Stockage, *33*(0). https://doi.org/10.51257/a-v1-be8092

Rejl, F. J., Haidl, J., Valenz, L., Marchi, A., Moucha, T., Petříček, R., & Brunazzi, E. (2017a). Liquid-phase mass-transfer coefficients of Mellapak structured packings under desorption of oxygen from primary alcohols. *Chemical Engineering Research and Design*, *127*, 1–9. https://doi.org/10.1016/j.cherd.2017.09.002

Rejl, F. J., Haidl, J., Valenz, L., Marchi, A., Moucha, T., Petříček, R., & Brunazzi, E. (2017b). Liquid-phase mass-transfer coefficients of Mellapak structured packings under desorption of oxygen from primary alcohols. *Chemical Engineering Research and Design*, *127*, 1–9. https://doi.org/10.1016/j.cherd.2017.09.002

Riede, T., & Schlüder, E. U. (1991). Diffusivities of the ternary liquid mixture 2-propanol-water-glycerol and three-component mass transfer in liquids. *Chemical Engineering Science*, *46*(2), 609–617. https://doi.org/10.1016/0009-2509(91)80020-Y

Rocha, J. A., Bravo, J. L., & Fair, J. R. (1996). *Distillation Columns Containing Structured Packings: A Comprehensive Model for Their Performance. 2. Mass-Transfer Model*. *Ind. Eng. Chem. Res* (Vol. 35). Retrieved from https://pubs.acs.org/sharingguidelines

Seikan, I., Sigeyasu, N., Takesi, K., & Zyozi, O. (1970). Hydrodynamics and Heat Transfer of Vertical Falling Liquid Films. *Chemical Pharmaceutical Bulletin*, (43), 594–602. Retrieved from http://www.mendeley.com/research/geology-volcanic-history-eruptive-style-yakedake-volcano-group-central-japan/

SHAH, S. N. (2015). FUNDUS FLUORESCEIN ANGIOGRAPHY- A DIAGNOSTIC MODALITY IN EVALUATION OF FUNDUS DISORDERS, (May).

Shedd, T. A., & Newell, T. A. (1998). Automated optical liquid film thickness measurement method. *Review of Scientific Instruments*, *69*, 4205. https://doi.org/10.1063/1.1149232

Singh, R. K., Galvin, J. E., Whyatt, G. A., & Sun, X. (2017). Breakup of a liquid rivulet falling over an inclined plate: Identification of a critical Weber number. *Physics of Fluids*, *29*(5), 1–37. https://doi.org/10.1063/1.4981920

SOLESIO, J. N. (1978). Mesure de l'épaisseur locale instantané d'un film liquide ruisselant sur une paroi mise en oeuvre d'une technique basée sur l'absorption des rayons X.

Solomenko, Z. (2016). *Two-phase flows over complex surfaces: towards bridging the gap between computations and experiments with application to structured packings*.

Song, D. (2017). Effect of Liquid Viscosity on Mass Transfer Area and Liquid Film Mass Transfer Coefficient for GT-OPTIMPAK 250Y. *Energy Procedia*, *114*, 2713–2727. https://doi.org/10.1016/j.egypro.2017.03.1534

Song, D., Seibert, A. F., & Rochelle, G. T. (2018). Mass Transfer Parameters for Packings: Effect of Viscosity. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, *57*(2), 718–729. https://doi.org/10.1021/acs.iecr.7b04396

Takahama, H., & Kato, S. (1980). Longitudinal flow characteristics of vertically falling liquid films without concurrent gas flow. *International Journal of Multiphase Flow*, *6*(3), 203–215. https://doi.org/10.1016/0301-9322(80)90011-7

Takamasa, T., & Hazuku, T. (2000). Measuring interfacial waves on film flowing down a vertical plate wall in the entry region using laser focus displacement meters. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, *43*(15), 2807–2819. https://doi.org/10.1016/S0017-9310(99)00335-X

Tiwari, R., Damsohn, M., Prasser, H. M., Wymann, D., & Gossweiler, C. (2014). Multi-range sensors

for the measurement of liquid film thickness distributions based on electrical conductance. *Flow Measurement and Instrumentation*. https://doi.org/10.1016/j.flowmeasinst.2014.09.002

Varchola, J., Huntosova, V., Jancura, D., Wagnières, G., Miskovsky, P., & Bánó, G. (2014). Temperature and oxygen-concentration dependence of singlet oxygen production by RuPhen as induced by quasi-continuous excitation. *Photochemical and Photobiological Sciences*, *13*(12), 1781–1787. https://doi.org/10.1039/c4pp00202d

Vaughan, W. M., & Weber, G. (1970). Oxygen Quenching of Pyrenebutyric Acid Fluorescence in Water. a Dynamic Probe of the Microenvironment. *Biochemistry*, *9*(3), 464–473. https://doi.org/10.1021/bi00805a003

Vitry, Y. (2011). *Étude expérimentale des écoulements film mince sur plan incliné avec contrecourant gaz dans des conditions de similitude aux écoulements cryogéniques*.

Viva, A., Aferka, S., Toye, D., Marchot, P., Crine, M., & Brunazzi, E. (2011). Determination of liquid hold-up and flow distribution inside modular catalytic structured packings. *Chemical Engineering Research and Design*, *89*(8), 1414–1426. https://doi.org/10.1016/j.cherd.2011.02.009

Wang, C. (2015). Mass Transfer Coefficients and Effective Area of Packing.

Wang, C., Perry, M., Seibert, F., & Rochelle, G. (2014). Packing characterization for post combustion CO 2 capture : mass transfer model development, *63*, 1727–1744. https://doi.org/10.1016/j.egypro.2014.11.180

Wang, M., Zheng, D., & Xu, Y. (2019). A new method for liquid film thickness measurement based on ultrasonic echo resonance technique in gas-liquid flow. *Measurement: Journal of the International Measurement Confederation*. https://doi.org/10.1016/j.measurement.2019.06.027

Wei, Z., Wang, Y., Wu, Z., Peng, X., & Yu, G. (2020). Wave characteristics of the falling liquid film in the development region at high Reynolds numbers. *Chemical Engineering Science*, *215*. https://doi.org/10.1016/j.ces.2019.115454

Woodrow, P. T., & Duke, S. R. (2001). Laser-induced fluorescence studies of oxygen transfer across unsheared flat and wavy air-water interfaces. *Industrial and Engineering Chemistry Research*, *40*(8), 1985–1995. https://doi.org/10.1021/ie000321j

Xu, F., Hébrard, G., & Dietrich, N. (2019). Comparison of three different techniques for gas-liquid mass transfer visualization. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, *150*, 119261. https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2019.119261

Zeng, J., Wang, Y., Wei, Z., Wang, L., Li, T., & Yu, G. (2022). Thickness distribution and fluctuation characteristics of liquid falling film under turbulent conditions. *Chemical Engineering Science*, *248*, 117172. https://doi.org/10.1016/j.ces.2021.117172

Zhang, J. T., Wang, B. X., & Peng, X. F. (2000). Falling liquid film thickness measurement by an optical-electronic method. *Review of Scientific Instruments*, *71*, 1883. https://doi.org/10.1063/1.1150557