



# Estimation et lois de variation du coefficient de transfert de chaleur surface/ liquide en ébullition pour un liquide alimentaire dans un évaporateur à flot tombant

Tarif Ali-Adib

## ► To cite this version:

Tarif Ali-Adib. Estimation et lois de variation du coefficient de transfert de chaleur surface/ liquide en ébullition pour un liquide alimentaire dans un évaporateur à flot tombant. Sciences de l'ingénieur [physics]. AgroParisTech, 2008. Français. NNT : 2008AGPT0007 . pastel-00004544

**HAL Id: pastel-00004544**

**<https://pastel.hal.science/pastel-00004544>**

Submitted on 13 Jan 2009

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

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

# THÈSE

pour obtenir le grade de

**Docteur**

de

**l'Institut des Sciences et Industries du Vivant et de l'Environnement  
(Agro Paris Tech)**

Spécialité : Génie des Procédés

*présentée et soutenue publiquement  
par*

TARIF ALI ADIB

FEVRIER-2008

Estimation et lois de variation du coefficient de transfert de chaleur  
surface/ liquide en ébullition pour un liquide alimentaire dans un  
évaporateur à flot tombant

---

Sous la direction de

Directeur de thèse: **M. le Professeur Jean VASSEUR**

Travail réalisé : AgroParisTech- Centre MASSY, UMR Genial, F-91744

Devant le jury :

M. Alain Le Bail, PR1, ENITIAA

Rapporteur

M. Jean Pierre Nadeau, PR1, ENSAM

Rapporteur

M. Philippe Bohuon, MCF, Cirad

Examineur

M. Bernard Rémond, GEA process engineering

Examineur

M. Jean Vasseur, PR1, AgroParisTech-Centre MASSY

Examineur

## **REMERCIEMENTS :**

Je suis reconnaissant à M. le Pr. A. LE BAIL et M. le Pr. J.P. NADEAU qui ont accepté d'être les rapporteurs de ce travail.

Je remercie M. P. BOHUON d'avoir accepté de siéger dans ce jury de thèse.

Je remercie la Société GEA-Process Engineering qui nous a soutenu et participé au financement de ce travail de recherche, notamment en la personne de M. Georges Martin et de M. Bernard Rémond.

Je remercie la Société SEEPEX, qui a fourni la pompe comme composant essentiel du pilote, et qui nous a permis d'avancer dans la réalisation du montage dans des conditions stables et fiables.

Je remercie toutes les personnes d'Agroparistech-Massy qui m'ont aidé, notamment M. Bertrand Heyd et Mme Decloux pour leurs conseils, M. Sommier, M. Sawka et Mr. Ben Moussa pour leur aide précieuse dans la réalisation du montage d'essai et son instrumentation.

Je remercie le laboratoire INRA du campus, qui nous a permis l'usinage de pièces délicates, en la personne de M. Herry et M. Gerlot, et qui ont donc contribué aux résultats de cette recherche.

Je remercie le laboratoire Biophysique Agroparistech-Massy, notamment M. G. Guvelier, Mme C. Michon et M. S. Mazdour pour leur gentillesse et leur aide dans ce travail.

Je remercie le département Génie des Procédés de m'avoir accueilli et encouragé dans mon travail, et fourni les moyens de cette recherche, en particulier mon directeur de thèse M. Vasseur, et Mme Belgome toujours accueillante et disponible, ainsi que le service documentation dans son ensemble.

Je remercie mon épouse et ma famille de m'avoir accompagné dans ce projet, au long de trois années, et dans les moments plus difficiles.

Mes remerciements vont également à l'équipe des doctorants pour avoir contribué à la bonne ambiance du GIA.

|                                                                                                                              |           |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| Symboles et notations .....                                                                                                  | 4         |
| <b>INTRODUCTION GENERALE.....</b>                                                                                            | <b>8</b>  |
| <b>Chapitre I. Analyse Bibliographie .....</b>                                                                               | <b>15</b> |
| 1-1- Différents types des évaporateurs.....                                                                                  | 16        |
| 1-2-Définition des propriétés thermo-physiques de fluide alimentaire.....                                                    | 20        |
| 1-2-1- La viscosité de fluides alimentaires.....                                                                             | 21        |
| 1-2-2-Tension superficielle $\sigma$ (N. m <sup>-1</sup> ).....                                                              | 23        |
| 1-2-3-Propriétés thermiques des fluides alimentaires.....                                                                    | 26        |
| 1-3-Température d'ébullition.....                                                                                            | 27        |
| 1-4-Nombres adimensionnels.....                                                                                              | 29        |
| 1-5- Analyses et Comparaison des formules de la littérature .....                                                            | 32        |
| 1-5-1-Le coefficient de transfert de chaleur côté liquide en ébullition<br>en vase (pool boiling).....                       | 32        |
| 1-5-1-1- L'expérience de Nukiyama.....                                                                                       | 33        |
| 1-5-1-2-Corrélations pour l'estimation de h en ébullition nucléée en vase.....                                               | 37        |
| 1-5-1-2 Comparaison entre les équations.....                                                                                 | 40        |
| 1-5-2 – Coefficient de transfert de chaleur h dans les évaporateurs à tubes verticaux en<br>flot tombant.....                | 44        |
| 1-5-2-1- Corrélations pour l'estimation h en ébullition non nucléée (dans un évaporateur<br>à flot tombant).....             | 45        |
| 1-5-2-1-1- Calcule de l'épaisseur de film ( $\delta$ ) en régime laminaire.....                                              | 46        |
| 1-5-2-1-2- Corrélations pour estimer h en régime laminaire et laminaire avec vagues<br>(wavy) en ébullition non nucléée..... | 50        |
| 1-5-2-1-3- Les corrélation d'estimation h en régime turbulent en ébullition non<br>nucléée.....                              | 55        |
| 1-5-2-2- Corrélations pour l'estimation de h dans un évaporateur à flot tombant en<br>ébullition nucléée.....                | 57        |
| 1-6- Conclusion partielle.....                                                                                               | 63        |
| <b>Chapitre II. Matériel et Méthode.....</b>                                                                                 | <b>64</b> |
| 2-1- Le pilote.....                                                                                                          | 65        |

# Sommaire

---

|                                                                                                                                                 |           |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| 2-1-1- La base téflon.....                                                                                                                      | 67        |
| 2-1-2-La surface de test.....                                                                                                                   | 68        |
| 2-1-3- La « noix » téflon supérieur.....                                                                                                        | 69        |
| 2-1-4 Le distributeur : cône et « cloche » d'écoulement + le vis de réglage.....                                                                | 70        |
| 2-1-5 Le condenseur.....                                                                                                                        | 74        |
| 2-1-6-Les pièces auxiliaires.....                                                                                                               | 76        |
| 2-1-7-Description du pilote complet, et mise en œuvre.....                                                                                      | 80        |
| 2-2-Estimation et mode du calcul de $h$ ( $W. m^{-2}. ^\circ C^{-1}$ ).....                                                                     | 83        |
| 2-3-Les produits étudiés.....                                                                                                                   | 86        |
| 2-4- Caractérisation des produits.....                                                                                                          | 87        |
| 2-4-1- Mesure de la viscosité.....                                                                                                              | 87        |
| 2-4-2- Mesure de la tension superficielle.....                                                                                                  | 87        |
| 2-5-Optimisation du plan d'expérience.....                                                                                                      | 89        |
| 2-5-1- Le plan central composite.....                                                                                                           | 90        |
| 2-5-2- Les plans D – optimaux.....                                                                                                              | 92        |
| 2-6-Étalonnage des sondes Pt100 et du débit de la pompe volumétrique.....                                                                       | 94        |
| 2-6-1- Etalonnage des Pt 100.....                                                                                                               | 94        |
| 2-6-2 -Etalonnage du débit volumique de liquide, en fonction de la variation de vitesse pour la pompe volumétrique.....                         | 96        |
| <b>Chapitre III. Résultats et discussion.....</b>                                                                                               | <b>99</b> |
| 3-1- Rappel de l'objectif.....                                                                                                                  | 100       |
| 3-2- Résultats pour d'eau, produit de référence.....                                                                                            | 101       |
| 3-2-1- l'effet du flux de chaleur $\phi$ ou de la différence de température<br>(Surface / Liquide) $\Delta\theta = (\theta_s - \theta_L)$ ..... | 101       |
| 3-2-2- Effet de la pression $P$ ou de la température du liquide en ébullition $\theta_L$ .....                                                  | 104       |
| 3-2-3- Effet du débit volumique par unité de périmètre de tube ( $\Gamma_L$ ).....                                                              | 105       |
| 3-2-4- Etat stationnaire et hétérogénéité des températures.....                                                                                 | 107       |
| 3-3- Etude d'un fluide Newtonien (Solutions de saccharose).....                                                                                 | 110       |
| 3-3-1- Effet du flux de chaleur $\phi$ ou de la différence de température<br>$\Delta\theta$ (S/L).....                                          | 110       |
| 3-3-2- L'élévation ébulliométrique (EE).....                                                                                                    | 115       |
| 3-3-3- Effet de la concentration de matière sèche ( $X_{MS}$ ).....                                                                             | 116       |

# Sommaire

---

|                                                                                                        |     |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| 3-3-4- Effet de la température du liquide en ébullition ( $\theta_L$ ) ou de la pression (P).          | 117 |
| 3-3-5- Interprétations basées sur la viscosité et la tension superficielle des jus sucrés.....         | 118 |
| 3-3-6- Effet du débit volumique par unité de périmètre de tube ( $\Gamma_L$ ).....                     | 123 |
| 3-3-7- Conclusion partielle.....                                                                       | 125 |
| 3-4 Modélisation dans le cas d'un liquide Newtonien (solution de saccharose).....                      | 126 |
| 3-4-1- plan d'expérience complet.....                                                                  | 126 |
| 3-4-2- Modèle polynomial linéaire.....                                                                 | 126 |
| 3-4-3- Modèle non linéaire.....                                                                        | 131 |
| 3-5-Simplification du plan d'expérience.....                                                           | 137 |
| 3-5-1- Le plan central composite.....                                                                  | 137 |
| 3-5-2- Le plan D- optimal.....                                                                         | 138 |
| 3-6- Etude d'un produit non Newtonien : solution de carboxy- méthyle cellulose (CMC)                   | 140 |
| 3-6-1- Effet du flux de chaleur $\phi$ ou de $\Delta\theta$ (S/L).....                                 | 140 |
| 3-6-2- Effet de la concentration de matière sèche ( $X_{MS}$ ).....                                    | 142 |
| 3-6-3- Mesure de la viscosité et de la tension superficielle de la solution de la solution de CMC..... | 143 |
| 3-6-4-Effet du débit volumique par unité de périmètre de tube ( $\Gamma_L$ ).....                      | 147 |
| 3-7- Modélisation du fluide non Newtonien (CMC).....                                                   | 149 |
| 3-7-1- Modèle polynomial linéaire.....                                                                 | 149 |
| 3-7-2 -Modèle non linéaire.....                                                                        | 150 |
| <b>Conclusion générale</b> .....                                                                       | 153 |
| <b>Références bibliographiques</b> .....                                                               | 160 |
| <b>Annexe 1</b> .....                                                                                  | 168 |
| <b>Annexe 2</b> .....                                                                                  | 170 |
| <b>Annexe 3</b> .....                                                                                  | 171 |
| <b>Annexe 4</b> .....                                                                                  | 173 |
| <b>Annexe 5</b> .....                                                                                  | 180 |

SYMBOLES ET NOTATIONS

|              |                                          |                    |
|--------------|------------------------------------------|--------------------|
| $a_w$        | Activité de l'eau                        | N.D.               |
| $A$          | Surface (Aire)                           | $m^2$              |
| $Bo$         | Nombre d'ébullition                      | N.D.               |
| $C_{pL}$     | Chaleur spécifique                       | $J.kg^{-1}.K^{-1}$ |
| $D$          | Diamètre                                 | $m$                |
| $d$          | Dérivée totale                           |                    |
| $D_t$        | Diffusivité thermique                    | $m^2.s^{-1}$       |
| $e$          | épaisseur                                | $m$                |
| $e$          | Eau                                      | indice             |
| $EE$         | élévation ébulliométrique                | $^{\circ}C$        |
| $enc$        | Encrassement                             | indice             |
| $U$          | Potentiel électrique                     | $V$                |
| $E_a$        | Energie d'activation                     | $J.(g\ mol)^{-1}$  |
| $exp$        | Fonction exponentielle                   |                    |
| $F$          | Force                                    | $N$                |
| $g$          | gravité                                  | $m.s^{-2}$         |
| $g$          | globale                                  | indice             |
| $G$          | Débit massique par unité de surface      | $kg.s^{-1}.m^{-2}$ |
| $\Delta H_e$ | Enthalpie latente molaire d'évaporation  | $kJ.mol^{-1}$      |
| $\Delta H_v$ | Enthalpie latente massique d'évaporation | $kJ.kg^{-1}$       |

|                 |                                                                  |                                  |
|-----------------|------------------------------------------------------------------|----------------------------------|
| H               | Hauteur                                                          | m                                |
| h               | Coefficient de transfert de chaleur<br>Surface/fluide à évaporer | $\text{W.m}^{-2}.\text{°C}^{-1}$ |
| Ka              | Nombre de Kapitza                                                | N.D.                             |
| L               | Longueur                                                         | m                                |
| L               | Liquide                                                          | indice                           |
| ln              | Logarithme népérien                                              | N.D.                             |
| Log             | Logarithme à base 10                                             | N.D.                             |
| m               | Masse                                                            | kg                               |
| $\dot{m}$       | Débit massique                                                   | $\text{kg. s}^{-1}$              |
| m               | Paroi (métallique)                                               | indice                           |
| M               | masse molaire                                                    | kg                               |
| N               | Nombre de sites de nucléation                                    | N.D.                             |
| Nu              | Nombre de Nusselt                                                | N.D.                             |
| P               | Pression                                                         | Pa                               |
| P <sub>t</sub>  | Pression totale                                                  | Pa                               |
| Pe <sub>t</sub> | Nombre de Péclet thermique                                       | N.D.                             |
| Pr              | Nombre de Prandtl                                                | N.D.                             |
| Q               | Energie thermique                                                | J                                |
| $\dot{Q}$       | Débit de chaleur ou puissance                                    | W                                |
| r               | Résistance thermique                                             | $\text{m}^2.\text{°C.W}^{-1}$    |

|                 |                                 |                                       |
|-----------------|---------------------------------|---------------------------------------|
| R               | Rayon                           | m                                     |
| Re              | Nombre de Reynolds              | N.D.                                  |
| R <sub>S</sub>  | Rugosité de la paroi            | m                                     |
| $\kappa$        | Constant de gaz parfait = 8.314 | J. mol <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> |
| s               | Surface de la paroi             | indice                                |
| so              | soluté                          | indice                                |
| SCR             | somme des carrés résiduels      |                                       |
| SCM             | somme des carrés par régression |                                       |
| SCT             | somme des carrés totale         |                                       |
| t               | Temps                           | s                                     |
| T               | Température absolue en Kelvin   | K                                     |
| $v_x, v_y, v_z$ | Composantes de vitesse          | m.s <sup>-1</sup>                     |
| $\vec{v}$       | Vecteur vitesse                 | m.s <sup>-1</sup>                     |
| V               | Volume                          | m <sup>3</sup>                        |
| v               | Vapeur                          | indice                                |
| $\dot{V}$       | Débit volumique                 | m <sup>3</sup> .s <sup>-1</sup>       |
| X <sub>MS</sub> | Concentration de matière sèche  | kg matière sèche/ kg solution         |
| x <sub>m</sub>  | Fraction molaire                | nombre mole A/nombre mole totale      |
| x, y, z         | Cordonnées spatiales            | m                                     |

|                  |                                                          |                                   |
|------------------|----------------------------------------------------------|-----------------------------------|
| $\Gamma$         | Débit massique par unité de périmètre de tube            | $\text{kg. m}^{-1}.\text{s}^{-1}$ |
| $\dot{\gamma}$   | Taux de cisaillement                                     | $\text{s}^{-1}$                   |
| $\delta$         | Epaisseur de film ruisselant                             | m                                 |
| $\phi$           | Densité de flux thermique                                | $\text{W. m}^{-2}$                |
| $\eta$           | Viscosité dynamique                                      | Pa.s                              |
| $\theta$         | Température                                              | $^{\circ}\text{C}$                |
| $\Delta\theta$   | Différence de température [surface/liquide]              | $^{\circ}\text{C}$                |
| $\Delta\theta_g$ | Différence de température [vapeur de chauffage/ liquide] | $^{\circ}\text{C}$                |
| $\lambda$        | Conductivité thermique                                   | $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$   |
| $\nu$            | Viscosité cinématique                                    | $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$        |
| $\pi$            | 3,1416                                                   | N.D.                              |
| $\rho$           | Masse volumique                                          | $\text{kg. m}^{-3}$               |
| $\sigma$         | Tension superficielle                                    | $\text{N.m}^{-1}$                 |
| $\tau$           | Contrainte tangentielle (ou de cisaillement)             | Pa                                |
| $\omega$         | Angle de contact                                         | degré                             |

## INTRODUCTION GENERALE

L'évaporation est une opération qui consiste à concentrer une solution ou une suspension de composés essentiellement non-volatils, par ébullition du solvant volatil, dans un appareil adapté, appelé « évaporateur ». L'évaporation concerne les produits liquides plus au moins visqueux, le produit concentré devant rester « pompable », ce qui différencie l'évaporation du séchage. C'est également une opération de séparation thermique au sens qu'il faut fournir la chaleur latente de vaporisation du solvant.

Cette opération est très utilisée dans les industries alimentaires, notamment dans les sucreries (cannes et betteraves), les industries traitant le lait, les jus de fruits [Tonelli et al, 90] ou de légumes, et les soupes et sauces [Runyon et al, 91]. Dans les industries alimentaires, le solvant le plus courant est l'eau, mais d'autres substances volatiles peuvent éventuellement se vaporiser en même temps (arômes, alcools, ammoniac, etc.), et les gaz dissous s'échapper (CO<sub>2</sub>, air, ...).

L'évaporation peut correspondre à plusieurs objectifs : réduire le volume et le poids afin de diminuer les coûts d'emballage, de stockage et de transport - faciliter la conservation du produit concentré, en diminuant l'activité de l'eau du produit (sirop de sucre, confiture, sérum de fromagerie, jus d'orange) - mais c'est souvent une étape intermédiaire d'un procédé global, avant des opérations ultérieures telles que la cristallisation, la précipitation, la coagulation, le moulage ou le séchage [Bimbenet et al, 2002].

Pour tous les types d'évaporateurs, le débit évaporatoire est relié à la puissance thermique  $\dot{Q}$  (W), qui dépend du coefficient de transfert de chaleur global ( $h_g$ ) au niveau de la surface d'échange de chaleur  $A$  (m<sup>2</sup>), et de la différence de température entre la vapeur de chauffe et le liquide en ébullition, soit  $\Delta\theta_g$  (°C) selon la relation suivante :

$$\dot{Q} = h_g \cdot A \cdot \Delta\theta_g \quad [1]$$

Chacune des grandeurs de l'équation [1] est importante pour la conception et l'optimisation du fonctionnement d'un évaporateur, le coefficient de transfert  $h_g$  fixant la surface  $A$  nécessaire [Peacock et al. 2003], et le coût d'investissement de l'appareil.

Le plus souvent dans les industries, l'évaporateur est à « multiple-effets » [Quaak et al. 1994, Van Wijck et al. 1994, Bakker et al. 2004], qui permet de réduire la consommation

énergétique : la vapeur émise par le produit sortant de l'effet (i) est utilisée pour le chauffage de l'effet suivant (i+1), qui fonctionne à une pression et une température inférieures. Ce principe peut se répéter plusieurs fois jusqu'au condenseur final selon figure 1 (exemple d'évaporateur 4 effets):

- Seul le premier effet reçoit de la vapeur de chauffe  $V_0$  provenant de la chaudière, et seule la vapeur émise dans le dernier effet  $V_{E4}$  est envoyée au condenseur, ce qui permet à la fois une économie de vapeur de chauffage et d'eau de refroidissement.
- Le liquide à concentrer passe en série, d'un effet dans l'autre soit à co-courant (selon fig1) soit à contre courant de la vapeur, selon le cas.
- Le nombre d'effets est limité par la somme des différences de température  $\Delta\theta_{gi}$  des n effets. Les températures extrêmes sont fixées par la thermo-sensibilité du produit d'une part (moins de 80 °C pour lait, etc.) et la température du condenseur d'autre part (par exemple 50 °C). Augmenter le nombre d'effets améliore l'efficacité énergétique, ce qui diminue le coût d'usage mais revient à diminuer le  $\Delta\theta_g$  de chacun, ce qui augmente le coût d'investissement [Bimbenet et al, 2002].

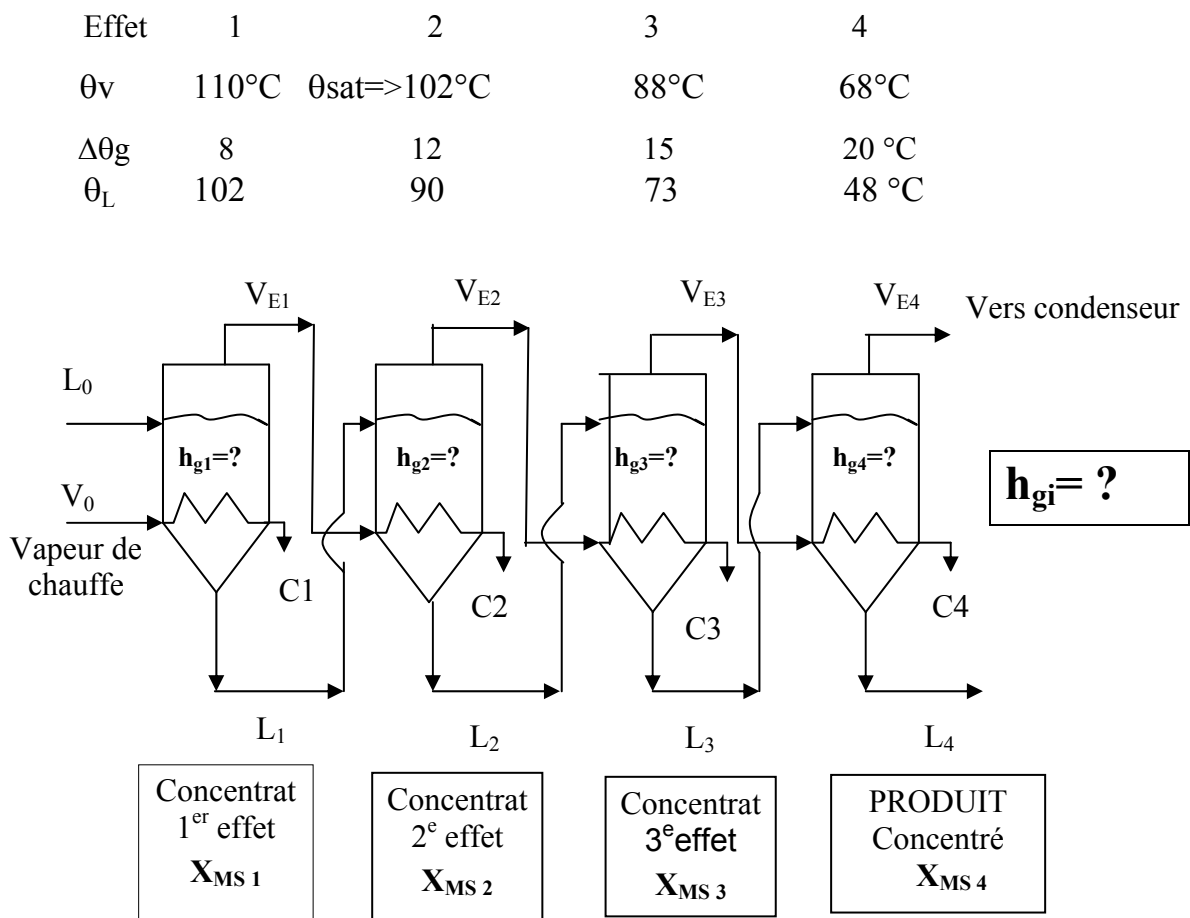


Figure 1: exemple d'évaporateur à 4 effets à co-courant.

Le débit évaporatoire total est lié au flux thermique total transmis au liquide, dans l'ensemble de l'évaporateur à multiple-effets, soit:

$$\dot{Q} = \sum_i h_{gi} A_i \Delta\theta_{gi} \quad \text{avec} \quad \Delta\theta_{\text{total}} = \sum_i \Delta\theta_{gi}$$

Pour concevoir chaque étape d'un évaporateur multiple-effets, il faut donc tenir compte de tous les paramètres propres à l'effet (i), et qui varient tout au long du procédé : la concentration du liquide  $X_{MS}$ , la différence de température  $\Delta\theta_g$ , la température d'ébullition  $\theta_L$  (avec  $\theta_L = \theta_{\text{sat}} + EE$ , où  $EE$  est l'élévation ébulliométrique),  $\theta_L$  liée à la pression (P) de l'effet, le débit de produit circulant  $\dot{m}_{Li}$ , etc., avec chaque fois une conséquence sur la valeur de  $h_g$ . La connaissance « a priori » du coefficient de transfert de chaleur global  $h_g$  ( $\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$ ) liée à des conditions très différentes dans chaque effet, est donc nécessaire pour le dimensionnement des évaporateurs industriels.

Pour un effet donné, le coefficient de transfert global  $h_g$  s'évalue à partir de son inverse  $1/h_g$ , qui est une résistance résultant de 4 résistances en série : la résistance du côté vapeur de chauffage ( $1/h_v$ ), la résistance de conduction à travers la paroi ( $e_m/\lambda_m$ ), la résistance du côté liquide ( $1/h$ ), avec éventuellement une résistance thermique d'encrassement sur la surface d'échange ( $r_{\text{enc}}$ ) selon l'équation 2 et la (fig.2).

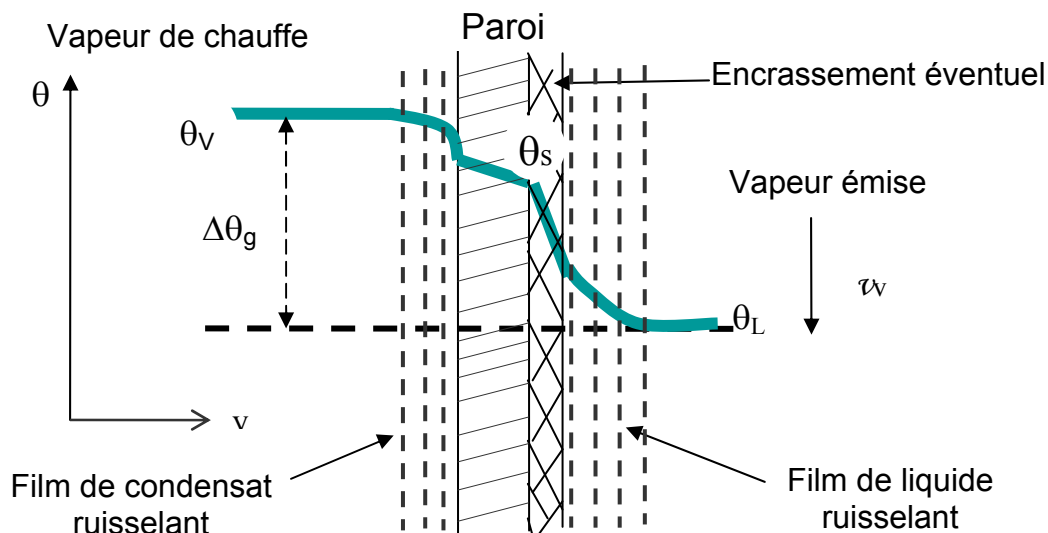


Figure 2: Profil de température en régime stationnaire, dans un évaporateur flot tombant, entre la vapeur de chauffe ( $\theta_v$ ) jusqu'au liquide en ébullition ( $\theta_L$ ).

$$\frac{1}{h_g} = \frac{1}{h_v} + \frac{e_m}{\lambda_m} + r_{enc} + \frac{1}{h} \quad [2]$$

où  $\lambda_m$  la conductivité thermique de la paroi,  $e_m$  l'épaisseur de la paroi.

Généralement, c'est le coefficient de transfert  $h$  entre paroi et liquide en ébullition qui est le plus difficile à prévoir, et souvent le facteur limitant du transfert de chaleur, spécialement pour les produits concentrés visqueux. Par exemple, dans l'équation [2], on prendra pour une paroi d'échange propre  $r_{enc} \approx 0$ , pour un tube d'acier inoxydable d'épaisseur  $10^{-3}$  m et de conductivité thermique  $\lambda_m = 15 \text{ W.m}^{-1}.\text{°C}^{-1}$ , la valeur  $\frac{e_m}{\lambda_m} = \frac{1}{15\,000}$ , et pour la vapeur de chauffage qui se condense en film,  $h_v \approx 10\,000 \text{ W.m}^{-2}.\text{°C}^{-1}$  [Bimbenet et al, 2002]. Côté fluide alimentaire en ébullition nucléée, le coefficient de transfert de chaleur est souvent inférieur à  $3000 \text{ W.m}^{-2}.\text{°C}^{-1}$ . Sur cet exemple, avec  $h = 3000 \text{ W.m}^{-2}.\text{°C}^{-1}$ , le coefficient global est  $h_g = 2\,000 \text{ W.m}^{-2}.\text{°C}^{-1}$ , ce qui illustre bien que c'est  $h$  côté produit qui est « le transfert limitant ».

Notre travail portera seulement sur le coefficient de transfert de chaleur  $h$  ( $\text{W.m}^{-2}.\text{°C}^{-1}$ ) *côté produit*, entre la surface de la paroi chauffante ( $\theta_s$ ) et le produit en ébullition ( $\theta_L$ ), son évaluation et ses lois de variation, dans la mesure où ce coefficient  $h$  est à la fois le plus limitant et aussi le plus incertain, et qu'il permet de prévoir le débit thermique de chaque effet, d'après :

$$\dot{Q} = h \cdot A \cdot \Delta\theta = h \cdot A \cdot (\theta_s - \theta_L)$$

Selon la littérature scientifique, pour évaluer  $h$ , on doit le relier aux paramètres définis ci-après, tenant à la fois aux propriétés physiques du produit ( $\rho_L, \eta_L, \sigma_L, Cp_L, \dots$ ), aux paramètres de procédé ( $X_{MS}, \Delta\theta, \Gamma, \phi, \theta_L$ ) et à la nature et les propriétés de la surface d'échange ( $Rs$ , etc.), selon une expression de la forme (3):

$$h = f \left[ (\rho_L, \eta_L, \sigma_L, Cp_L, \dots)_{(X_{MS}, \theta_L)} \dots, Rs, \dots, \Gamma, (\theta_s - \theta_L) \text{ ou } \phi, Psat \text{ ou } \theta_L, \text{ etc } \dots \right] \quad [3]$$

- Propriétés du produit, pouvant varier avec la concentration  $X_{MS}$  et la température  $\theta_L$  :

$\rho_L$  : masse volumique du liquide                       $\rho_V$  : masse volumique de la vapeur

$\sigma_L$  : tension de surface (liquide/vapeur)

$\eta_L$  : viscosité dynamique (Pa.s)                       $C_{pL}$  : capacité thermique

MES : concentration en matières en suspension, pouvant agir comme germes de nucléation, ...

- Caractéristiques de la paroi d'échange, dépendant du matériau utilisé :

$\lambda_m$  : conductivité thermique                       $e_m$  : épaisseur

$R_s$  : rugosité de la surface (polissage)

$\omega$  : angle de contact paroi/ produit (tension interfaciale liquide/paroi), ...

- Caractéristiques du procédé (dans l'effet considéré) :

$\Gamma$  : débit spécifique de mouillage (en flot tombant)

$\Delta\theta = (\theta_s - \theta_L)$                       ou  $\phi$  : flux thermique, constaté ou imposé

$\theta_L$  : fonction de la pression  $P$  de l'effet, lié à la condensation de la vapeur émise dans l'effet suivant.

Mode d'évacuation de la vapeur émise, pression hydrostatique dans le liquide, ...

Dans la bibliographie, on trouve beaucoup de corrélations empiriques pour estimer le coefficient de transfert de chaleur  $h$  en ébullition, citées et commentées plus loin (McNelly, Rohsenow, Chun et Seban, Bouman et al, etc.). Non seulement ces corrélations ne sont applicables que dans certaines conditions (pour un produit donné, selon le type d'évaporateur, le régime d'écoulement, et/ou le régime de nucléation, etc.), mais elles dépendent des propriétés thermo-physiques du produit, qui vont varier avec la concentration et la température tout au long du procédé, et leur utilisation suppose d'avoir ces données au préalable.

Par ailleurs, quand nous ferons la comparaison des valeurs de  $h$  tirées des formules pour les mêmes propriétés thermo-physiques du produit, et le même domaine d'application, la simulation révélera une grande dispersion des résultats, et donc une très faible fiabilité prédictive de ces formules pour l'ingénierie. Ainsi, non seulement les mesures rhéologiques à chaud (100 °C voire plus) et en milieu concentré sont-elles difficiles à conduire, mais leur mise en œuvre dans les formules de la littérature va-t-elle laisser néanmoins une grande

incertitude sur la prédiction de  $h$  en ébullition, en particulier dans le domaine des industries alimentaires. C'est pourquoi, les constructeurs d'évaporateurs doivent en général passer par une étape d'essais sur pilote de taille « moyenne », en régime permanent, pour assurer la valeur de  $h$  (et  $h_g$ ), ce qui est fort coûteux. Nous allons proposer une autre démarche, plus économique que cette dernière, et incluant la modélisation des résultats.

L'objectif de cette thèse est d'explorer et définir une méthode si possible fiable et économique pour estimer le coefficient de transfert de chaleur  $h$  côté produit en ébullition dans un évaporateur, sans avoir besoin de mesurer au préalable les propriétés physiques des produits. Elle est basée sur l'expérience, et nous nous limiterons au cas de l'évaporation « flot tombant » en tube vertical, en explorant les résultats expérimentaux acquis sur un pilote de laboratoire de type flot tombant, conçu par nous et instrumenté, tel que décrit dans chapitre II « Matériel et méthodes ».

On proposera une modélisation des lois de variations de  $h$  en fonction des facteurs d'influence, soit une forme adaptée et simplifiée de l'équation (3) citée plus haut, en fonction des paramètres du procédé, et seulement de la concentration concernant le produit, donc sans avoir besoin de mesurer au préalable les caractéristiques thermo-physiques du produit. Les essais ont lieu dans les conditions représentatives du procédé, pour un objectif de fiabilité accrue par rapport aux formules de la littérature, comparé à la grande dispersion des résultats constatée entre différentes formules. Notre modélisation, si elle est validée, proposera aussi un « formalisme » pour une banque de données produit, utilisable en calcul automatique d'appareil, quand ( $X_{MS}$ ,  $\theta_L$ ,  $\Delta\theta$ ,  $\Gamma$ , ...) varient tout au long du procédé, et facilitant l'exploration de variantes (augmentation du nombre d'effets, compression mécanique de vapeur à faible  $\Delta\theta$ , etc.). On explorera aussi la possibilité de simplifier le plan d'expérience mis en œuvre pour représenter le comportement d'un produit donné, dans le sens de moins d'essais (plan d'expérience optimisé), tout en restant suffisamment représentatif du domaine étudié. On comparera aussi le cas d'un fluide Newtonien et d'un fluide non-Newtonien.

Dans cette démarche, tout l'effort de caractérisation rhéologique et thermo-physique attaché aux formules actuelles de la littérature, est donc remplacé par des mesures expérimentales dans des conditions maîtrisées, représentatives du procédé (en particulier pour l'écoulement), reproductibles et si possible plus fiables. On montrera que le coefficient de transfert de chaleur  $h$  côté liquide peut alors s'exprimer en fonction d'un petit nombre de paramètres du procédé, selon l'équation 4), représentative d'un produit donné :

$$h = f(X_{MS}, \theta_L \text{ ou } P_{sat}, \phi \text{ ou } (\Delta\theta), \Gamma, \dots) \quad [4]$$

Cette démarche de thèse est présentée au cours trois chapitres :

- Chapitre I : Analyse bibliographique critique.
- Chapitre II : Matériel et méthode.
- Chapitre III : Résultats et discussions pour deux différents comportements rhéologiques du liquide : Newtonien (jus sucré) et non-Newtonien (solution de carboxy-méthyle cellulose - CMC).

# **Chapitre I**

## **Analyse Bibliographie**

## 1-1- Différents types d'évaporateurs

Les évaporateurs sont différents selon la source de chaleur (évaporateurs chauffés par feu nu ou par la vapeur) et la géométrie de la surface d'échange [Minton, 1986].

- Evaporateur à double enveloppe ou à serpentins : le plus ancien évaporateur chauffé par la vapeur est à double enveloppe, représenté en figure 3. Le coefficient de transfert de chaleur global de tels appareils est très variable ( $300 \text{ à } 1200 \text{ W. m}^{-2}. ^\circ\text{C}^{-1}$ ) selon la convection dans la solution, donc selon sa viscosité. Pour les appareils de grande capacité, la relativement faible surface d'échange des évaporateurs à double enveloppe par rapport au volume, a amené à ajouter des serpentins à l'intérieur des cuves chauffées par la vapeur se condensant à l'intérieur du tube. Les deux types (à double enveloppe ou à serpentins) fonctionnent par ébullition dite 'en vase' (pool boiling), où la surface de chauffe est immergée dans un liquide, qui bout à température quasi constante (température d'ébullition, à pression imposée). Le principe peut être batch, ou continu.

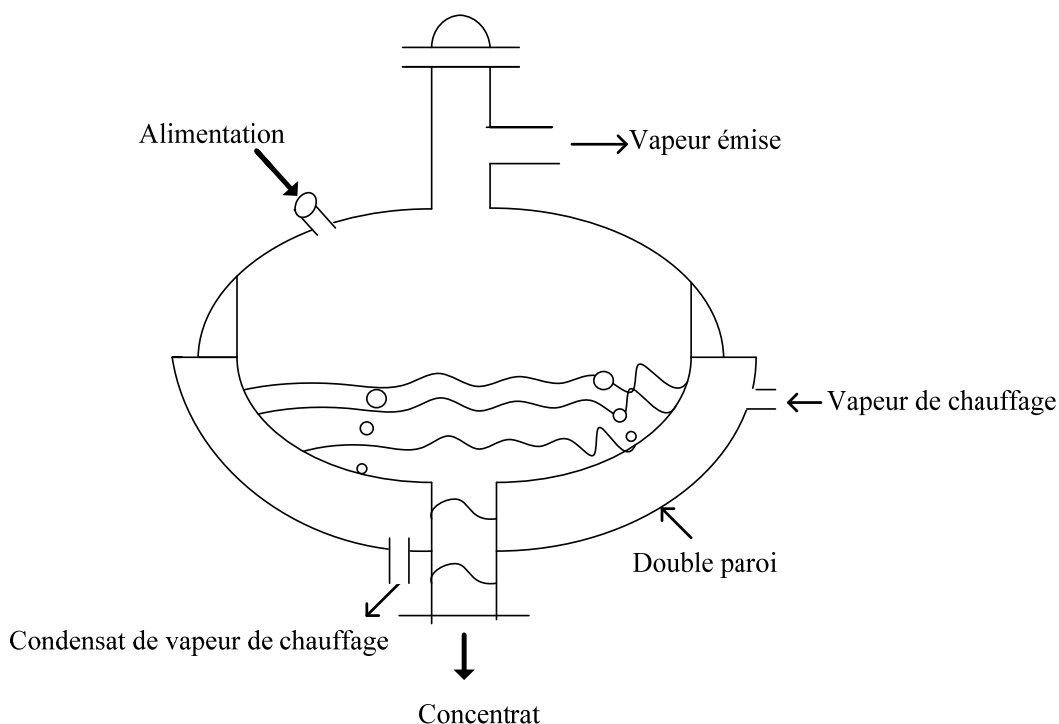


Figure 3 : Schéma simplifié d'évaporateur à double enveloppe

- Evaporateur à tubes horizontaux, la vapeur de chauffe se condensant à l'intérieur des tubes (selon figure 4). Il fonctionne avec une surface d'échange immergée, donc aussi de type « ébullition en vase » comme le précédent, mais le rapport surface d'échange/volume est plus favorable. [Leleu .R, 1992] décrit un coefficient de transfert de chaleur global dans ce type d'appareil de l'ordre de  $h_g \approx 2500 \text{ W. m}^{-2}. ^\circ\text{C}^{-1}$  pour l'eau pure à pression atmosphérique, pour un écart de température (vapeur de chauffe/ liquide)  $\Delta\theta_g \approx 25 ^\circ\text{C}$ .

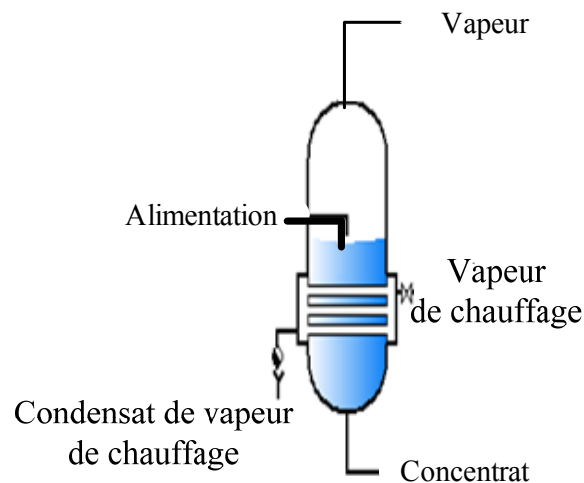


Figure 4 : schéma simplifié d'évaporateur à tubes horizontaux immergés.

Il existe une variante de ce type d'appareil avec une surface d'échange constituée de tubes horizontaux, où le liquide à évaporer ruissèle en film à l'extérieur des tubes. Il fonctionne alors selon le mécanisme d'ébullition en film mince ruisselant à la surface des tubes horizontaux (falling film), mais l'écoulement n'est pas le même que pour les évaporateurs « à flot tombant » décrits plus loin. Le coefficient de transfert de chaleur global  $h_g$  dans ce type d'évaporateur peut atteindre  $5500 \text{ (W. m}^{-2}. ^\circ\text{C}^{-1})$  pour l'eau pure à pression atmosphérique [Leleu .R, 1992].

- Evaporateur à tubes verticaux courts (Robert) : il est constitué essentiellement d'un faisceau tubulaire autour d'un « puits central » (Fig.5). La vapeur de chauffe est à l'extérieur des tubes, le liquide à l'intérieur des tubes ouverts à chaque extrémité. Les bulles de vapeur émises au sein du produit en ébullition, montent dans les tubes et entraînent le liquide, ce qui établit la circulation liquide dite « par grimpage ». Il faut contrôler le niveau de liquide, qui a une grande importance sur la valeur de coefficient

de transfert de chaleur. Le niveau optimal se situe classiquement entre le cinquième et le tiers de la hauteur du tube. Des valeurs du coefficient de transfert global  $h_g \approx 2600$  ( $\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$ ) peuvent être atteintes dans ces conditions pour l'eau pure, à pression atmosphérique [Leleu .R, 1992].

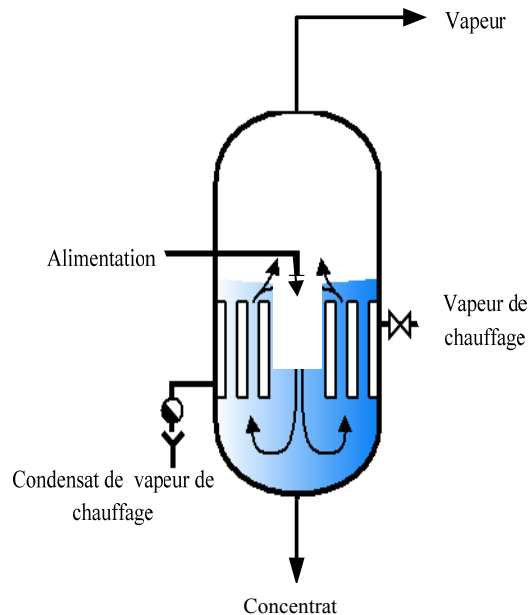


Figure 5: schéma simplifié d'évaporateur à tubes verticaux courts (par internet, [azproche.hosterea.org](http://azproche.hosterea.org))

- Evaporateur à tubes verticaux longs à grimpage (Kestner). Ce type d'évaporateur est doté de tubes de 7 m de long ou plus, le liquide à évaporer circulant à l'intérieur des tubes et la vapeur de chauffage se condensant à l'extérieur des tubes (Fig.6). L'effet de grimpage crée un fort cisaillement du liquide le long de la surface, ce qui a pour conséquence d'améliorer le coefficient de transfert thermique même pour un liquide très visqueux. [Leleu .R, 1992] annonce pour ce type d'appareil, un coefficient de transfert global  $h_g \approx 3000$  ( $\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$ ) pour l'eau pure à pression atmosphérique (quel  $\Delta\theta$  ?).

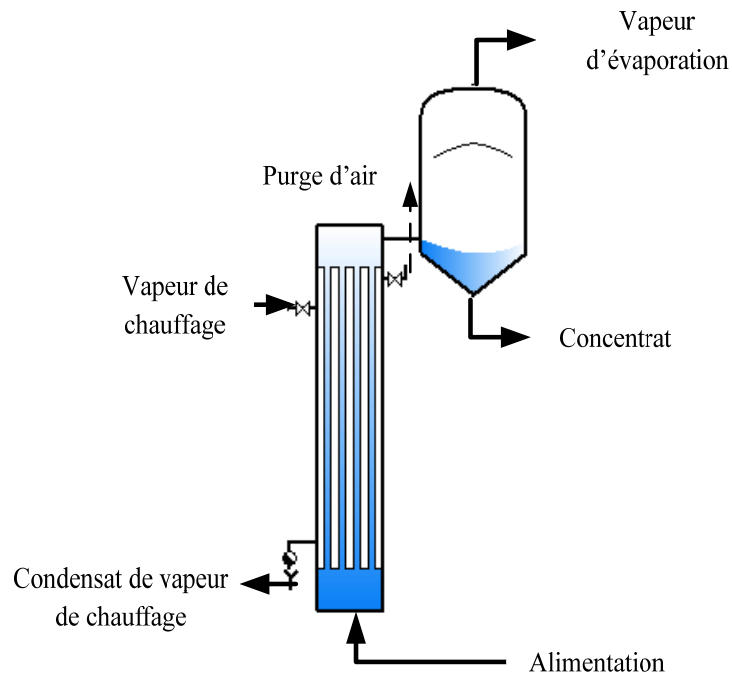


Figure 6: schéma simplifié d'évaporateur à tubes verticaux longs (par internet, [azproche.hosterea.org](http://azproche.hosterea.org)).

- Evaporateur à flot tombant: dans ce type d'appareil, le liquide à évaporer est introduit dans l'évaporateur dans le haut des tubes, le séparateur de vapeur étant placé en bas, et/ou à côté (figure7).

L'appareil est aussi appelé évaporateur « à descendage », car le liquide descend en film ruisselant le long de la paroi du tube (falling film), côté interne du tube. On parle d'ébullition en film mince ruisselant, la « minceur » relative du film étant liée à sa rhéologie et au débit d'alimentation. Un avantage est qu'il n'y a pas ici de pression hydrostatique dans le liquide, seulement une certaine surpression interne liée à la perte de charge de la vapeur émise, circulant au centre du tube. Ce type d'appareil, permet d'obtenir un coefficient de transfert de chaleur global élevé pour un plus faible  $\Delta\theta_g$  qu'en grimpage, et/ou des conditions générales de fonctionnement plus favorables (augmentation du nombre d'effets [Hoffman, 2004], faible temps de séjour du produit, possibilité d'abaisser la température la plus chaude  $\theta_{v0}$ , cas de produits thermosensibles). Leleu R, 1992, annonce  $h_g \approx 4000 \text{ (W. m}^{-2} \cdot \text{°C}^{-1})$  pour l'évaporation d'eau à pression atmosphérique.

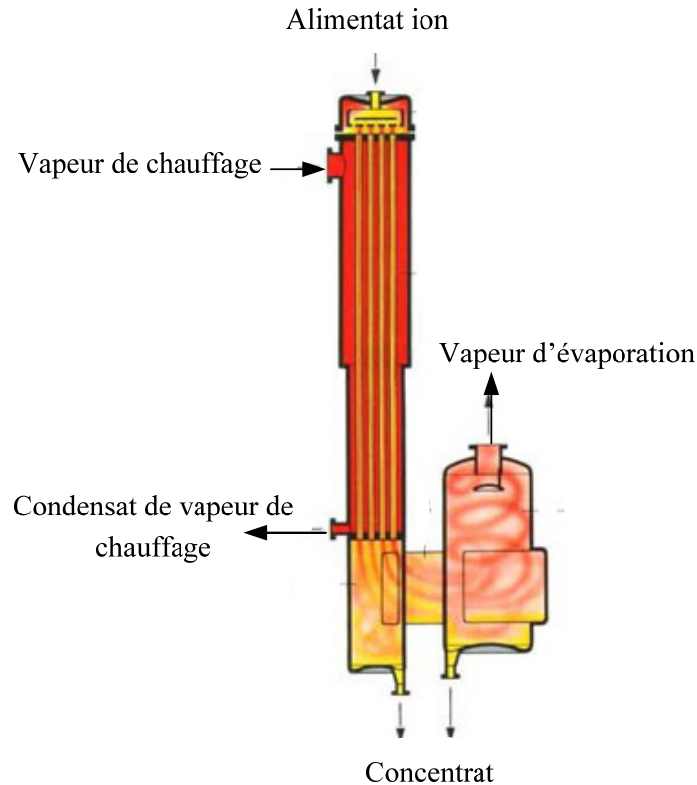


Figure 7: schéma simplifié d'évaporateur à flot tombant (par internet, [www.niroinc.com](http://www.niroinc.com)).

- Il existe d'autres types d'évaporateurs. Citons : évaporateur à plaques, évaporateur à tubes inclinés, évaporateur à circulation forcée, évaporateur à film raclé, évaporateur à chauffage spécial (par gaz chauds et sec ou humides, par huile, par sels fondus et par induction) [Leleu .R, 1992].

## 1-2- Définition de certaines propriétés thermo-physiques du fluide alimentaire

L'estimation de  $h$  dans toutes les formules de génie chimique actuellement disponibles dans la bibliographie est reliée aux propriétés thermo-physiques des produits. Ces propriétés thermo-physiques (par exemple :  $\eta_L$ ,  $\rho_L$ ,  $\lambda_L$  ...) sont généralement variables avec la concentration et la température de produit, et éventuellement aussi fonction du gradient de vitesse pour la viscosité  $\eta_L$  dans le cas d'un comportement non-Newtonien pour certains produits alimentaires concentrés. Bien que nous chercherons par principe à estimer  $h$  en fonction de la seule variable concentration en matière sèche  $X_{MS}$  concernant le produit, et des variables du

procédé ( $\theta_L$ ,  $\Gamma$ ,  $\phi$  ou  $\Delta\theta$ , ...), nous allons néanmoins mesurer certaines propriétés physiques utiles dans un but explicatif pour se comparer à la littérature, qui sont la viscosité et la tension superficielle de liquide.

### 1-2-1- La viscosité d'un fluide alimentaire

Le comportement rhéologique des fluides alimentaires évolue au cours du procédé, sous l'effet des changements de concentration  $X_{MS}$  et de température  $\theta_L$ , mais aussi éventuellement

du taux de cisaillement, exprimé par le gradient de vitesse  $\dot{\gamma} = \frac{dv}{dx}$  (en  $s^{-1}$ )

On utilise la « viscosité dynamique »  $\eta$  pour représenter et classer le comportement en

écoulement des fluides alimentaires, définie par  $\eta = \frac{\tau}{\dot{\gamma}}$

où  $\tau$  résulte d'une mesure expérimentale (à  $X_{MS}$ ,  $\theta_L$ ,  $\dot{\gamma}$  donnés).

Selon la relation entre la contrainte de cisaillement et le taux de cisaillement présentée en figure (8), nous pouvons distinguer deux types de comportements rhéologiques :

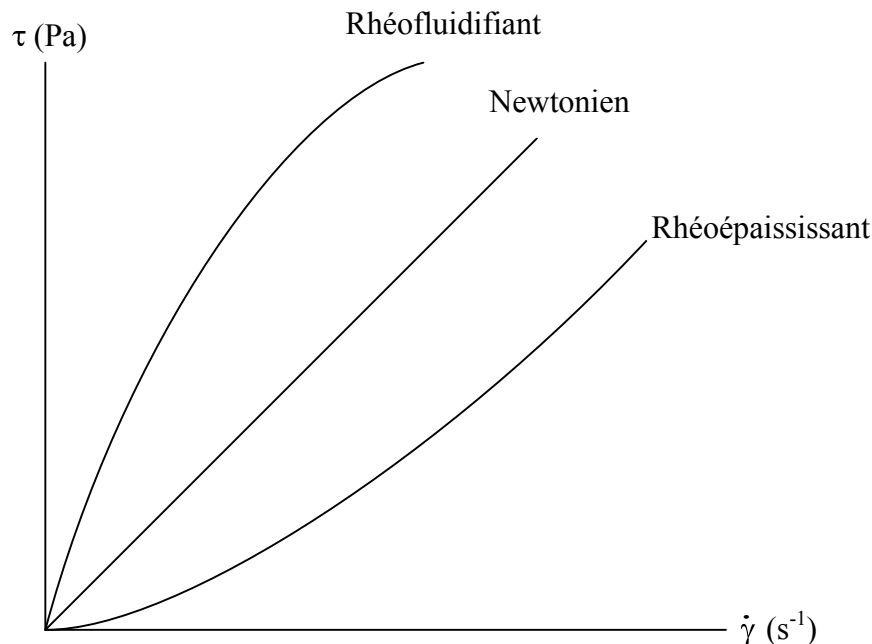


Figure 8 : fluides Newtoniens et non-Newtoniens

- **Les fluides Newtoniens** : dont la viscosité ne dépend pas du taux de cisaillement

( $\dot{\gamma} = \frac{dv}{dx}$ ), mais  $\eta$  dépend de la température et de la concentration.

Pour l'effet de la température, on utilise généralement une loi d'Arrhenius :

$$\eta = A \exp \left[ \frac{E_a}{R T} \right] \quad [5]$$

avec  $A$  : une valeur dépendant du fluide (Pa.s) ou ( $\eta_\infty$ ),  $E_a$  : énergie d'activation en (J. mol<sup>-1</sup>),  $R$  : constante des gaz parfaits = 8,314 (J. mol<sup>-1</sup>. K<sup>-1</sup>) et  $T$  : la température en (K). Pour la concentration de matière sèche [Marao et al, 1994, Lewis, 1987, Bonnier et al, 2002] proposent:

$$\eta_{spe} = \left[ \exp^{k X_{MS}} - 1 \right] \quad [6]$$

avec  $k$  : constante dépendant du fluide,  $X_{MS}$  : la concentration de matière sèche (kg matière sèche/ kg solution) et  $\eta_{spe}$  : la viscosité spécifique définie quand l'eau est le solvant par :

$$\eta_{spe} = \left( \frac{\eta_{sol} - \eta_e}{\eta_e} \right)$$

où  $\eta_{sol}$  est la viscosité de la solution et  $\eta_e$  est la viscosité de l'eau.

D'autres équations reliant la viscosité spécifique et la concentration peuvent être trouvées dans la littérature [Lewicki, 2004], et par exemple [Marao et al, 1994, Lewis, 1987, Bonnier et al, 2002] :

$$\eta_{spe} = a X_{MS} + b X_{MS}^2 + c X_{MS}^3$$

applicable selon les auteurs, à des liquides alimentaires Newtoniens : Lait entre 8,26 et 29 %MS, jus de fruit pur (jus de pomme dépectiné (15-75°Brix), jus d'orange filtré (10-18°Brix), jus de raisin (concord grape juice 15-50°Brix)) [Rai et al, 2005], jaune d'œuf, solutions sucrées, etc.

- **Les fluides non-Newtoniens** : dont la viscosité dépend au taux de cisaillement ( $\dot{\gamma}$ ), en plus de la température et de la concentration. On les représente l'effet de taux de cisaillement par une loi puissance  $n$  :

$$\tau = k \dot{\gamma}^n \quad [7]$$

où  $n$  (« flow behavior index ») et  $k$  (« consistency coefficient ») sont constants.

On définit deux types de fluides non -Newtoniens :

- Rhéofluidifiants : la viscosité apparente à un taux de cisaillement donné, diminue en fonction de l'augmentation du taux de cisaillement. Dans ce cas, l'exposant  $n < 1$  dans la loi de puissance (Eq. 7).

Exemple: Jus de fruit concentré, jus de fruit tropical (passion, 15-33°Brix), jus d'orange (60-65°Brix) [Hernandez et al, 1995], chocolat fondu, purée des légumes et fruits, protéine concentré, etc. [Marao et al, 1994].

- Rhéoépaississants: la viscosité apparente augmente en fonction de l'augmentation du taux de cisaillement. Dans ce cas, l'exposant  $n > 1$  dans la loi de puissance (Eq.7).

Exemple : certaines suspensions d'amidon dans l'eau [Marao et al, 1994].

### 1-2-2- Tension superficielle $\sigma_L$ (N. m<sup>-1</sup>):

La tension superficielle à l'interface liquide/air ou vapeur de liquide, notée  $\sigma_L$ , résulte des phénomènes d'attraction moléculaire au sein d'un liquide, qui se manifestent par une énergie de surface (J) qu'il faut dépenser pour accroître d'une unité (m<sup>2</sup>) la surface libre de liquide, en transférant du liquide de l'intérieur vers sa surface. Elle est en (J/m<sup>2</sup>), mais c'est aussi la force située dans le plan de la surface libre du liquide, en (N/m) de longueur créée [Sacadura, 2000]. Elle s'écrit :

$$\sigma_L = \left( \frac{\partial E}{\partial A_i} \right)_{T,P,n_i} = \frac{F}{\ell} \quad [8]$$

avec :  $E$  est l'énergie libre de surface,  $A_i$  est l'aire interfaciale,  $n_i$  est le nombre de moles du composant  $i$ ,  $F$  est la force s'opposant à l'augmentation de surface et  $\ell$  est le périmètre interfacial.

La tension superficielle dépend de la nature du liquide considéré et du milieu continu (gaz, solide ou liquide) avec lequel ce dernier est en contact, ainsi que de la température et de la concentration pour les solutions.

Pour l'eau pure en contact avec l'air, [Sacadura, 2002] on a :  $\sigma = (128 - 0,185 T) \cdot 10^{-3}$  N. m<sup>-1</sup>, avec  $T$  en K, soit  $\sigma_L = 0,059$  N. m<sup>-1</sup> à 100 °C et  $\sigma_L = 0,066$  à 60 °C, correspondant à une assez faible variation vis-à-vis du procédé.

-Pour l'interface liquide-vapeur, la tension superficielle résulte du déséquilibre des forces de cohésion existant entre les molécules constituant du liquide, à l'interface liquide/vapeur. On assimilera ici  $\sigma_L$  (liquide /vapeur) à  $\sigma$  (liquide/air) [Gregorig, 1965].

La loi de Laplace, en considérant une bulle de vapeur sphérique de (rayon R), relie la tension de surface à une surpression interne  $\Delta p$ , selon [Lallemand, 2005, Rohsenow, 1973]:

$$\Delta P = (P_{\text{int}} - P_{\text{ext}}) = \frac{2 \sigma_L}{R} \quad [9]$$

Cette équation démontre la difficulté de naissance d'une bulle de vapeur, dans la mesure où un petit rayon initial demande une grande surpression  $\Delta P$ , correspondant à un grand écart de température par rapport à l'équilibre thermodynamique existant hors de la bulle ( $p_{\text{ext}}$ ). Seuls quelques sites où une courbure initiale de la surface liquide préexiste, seront actifs pour la nucléation, le nombre de sites actifs augmentant avec l'écart à l'équilibre  $\Delta P$  ou  $\Delta \theta$ . Par contre, la surface supérieure du liquide (grand rayon de courbure) permet la mise à l'équilibre, ce qui correspond à une situation d'ébullition en surface du liquide dite « non nucléée ».

- Pour l'interface liquide/paroi  $\sigma_{s-L}$ . Si on dépose une goutte de liquide sur une surface solide, elle a approximativement une forme de calotte sphérique caractérisée par un angle de contact  $\omega$ , entre le plan tangent à l'interface (liquide-vapeur) et la surface (coté liquide) (figure 9).

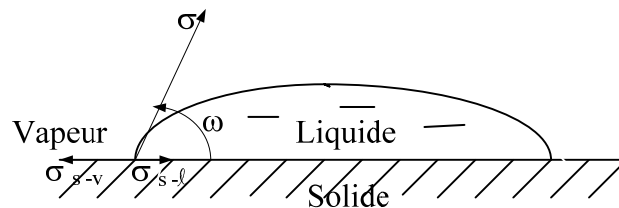


Figure 9 : bilan des forces de tension superficielle pour une goutte déposée sur une surface solide.

La valeur de l'angle  $\omega$  dépend à la fois du produit ( $\sigma_L$ ) et de l'énergie de solide (paroi). Si  $\omega$  tend vers zéro, le liquide est dit très mouillant vis-à-vis de la surface (pentane sur une paroi propre et polie, Lallemand, 2005). Si  $\omega$  est obtus, le liquide est peu mouillant

sur la surface (exemple : mercure sur du verre, Lallemand, 2005). Sur la ligne triple, il y a trois interfaces : liquide – vapeur, liquide – solide et vapeur – solide. Chaque interface est caractérisée par une tension superficielle (respectivement  $\sigma_{L-v}$ ,  $\sigma_{s-L}$  et  $\sigma_{s-v}$ ), où la tension superficielle à l'interface liquide – vapeur ( $\sigma_{L-v}$ ) définie au dessus (équations 8 et 9) est notée simplement  $\sigma_L$ . L'équilibre des forces interfaciales agissant sur la ligne triple s'écrit (condition de Young) :

$$\sigma_L \cdot \cos \omega = (\sigma_{s-v} - \sigma_{s-L}) \quad [10]$$

L'angle de contact  $\omega$  dit « statique », varie avec la nature chimique (paroi hydrophile ou hydrophobe) et l'état de surface (rugosité). Lorsque la ligne triple est mobile, l'angle de contact peut varier dans le temps, et on distingue un angle de contact d'avancée et un angle de recul.

La tension de surface liquide/ paroi est utile dans notre cas, pour expliquer plusieurs phénomènes :

- La possibilité d'apparition de « taches sèches », le film ne couvrant plus toute la surface chauffante, surtout quand le film est d'épaisseur faible, si le débit spécifique  $\Gamma$  est faible, la loi qui relie l'épaisseur du film  $\delta$  au débit faisant intervenir la viscosité est décrit plus loin (cf. § 1-5-2-1)
- La force qui retient les bulles de vapeur contre la paroi jusqu'à leur détachement, selon un bilan de forces décrit plus loin, ce qui fixe la taille des bulles émises, leur fréquence d'émission, et l'agitation induite, avec une conséquence sur les transferts.
- La difficulté de création de bulles de vapeur en ébullition nucléée, localisée sur des défauts de la surface (rugosité, rayures), qui créent une courbure locale de l'interface liquide/vapeur localisant les sites de nucléation.

Remarquons que, dans la partie expérimentale de la thèse, nous n'utiliserons que la tension superficielle  $\sigma_L$  à l'interface liquide/vapeur, la nature de la surface solide étant toujours la même dans notre cas (= inox poli). Mais d'autres types de surfaces (rugosité, matériau, angle de contact (s-L), ...) pourraient être étudiés avec le même montage pilote.

### 1-2-3- Propriétés thermiques des fluides alimentaires

Certaines propriétés thermiques des fluides alimentaires sont classiquement utiles pour l'estimation a priori des coefficients de transfert, et pour les bilans thermiques d'un évaporateur.

• Chaleur spécifique :  $C_p$  ( $\text{kJ} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$ )

A la température  $\theta$ ,  $C_p$  est la quantité de chaleur en kJ qui doit être fournie à l'unité de masse d'un corps (1kg) pour élever sa température de  $1^\circ\text{C}$ .

Pour des produits alimentaires (solution aqueuse composée de sucres, de sels minéraux (cendres), de protéines et de lipides), nous pouvons évaluer la chaleur spécifique comme suit :

[Choi et Okos, 1983]:

$$C_p = 4,180X_{\text{eau}} + 1,711X_{\text{protein}} + 1,928X_{\text{sucré}} + 1,547X_{\text{lipide}} + 0,908X_{\text{cendre}} \quad [11]$$

[Rahman, 1995]:

$$C_p = C_{p_{\text{eau}}} (0,34X_{\text{sucré}} + 0,2X_{\text{sel}} + 0,37X_{\text{protéine}} + 0,4X_{\text{lipide}} + X_{\text{eau}}) \quad [12]$$

• Enthalpie massique : ( $\text{kJ} \cdot \text{kg}^{-1}$ )

L'enthalpie massique d'une solution dépend de sa température et sa composition. Ces données sont disponibles pour quelques solutions seulement [Rahman, 1995].

Pour une solution aqueuse composée, de sucres, de sels, de protéines et de lipides (exemple du lait), l'enthalpie massique du mélange peut être calculée par la relation [Rahman, 1995] :

$$H_L = C_p \cdot \theta_L \quad [13]$$

Des équations 12 et 13, pour les solutions de sucres, on attribue au soluté une chaleur spécifique propre de  $(0,34 \cdot C_{p_{\text{eau}}})$  et  $(X_{\text{eau}} = 1 - X_{\text{sucré}})$  ce qui donne :

$$H_L = C_{p_{\text{eau}}} (1 - X_{\text{sucré}} + 0,34X_{\text{sucré}}) \theta_L \quad \text{ou} \quad [14]$$

$$H_L = C_{p_{\text{eau}}} (1 - 0,66X_{\text{sucré}}) \cdot \theta_L$$

Ainsi, l'estimation des enthalpies pour les liquides alimentaires est-elle relativement facile sur des ordres de grandeur suffisants.

L'enthalpie massique de la vapeur d'eau émise à la température  $\theta_L$  de la solution est donnée par l'équation suivante :

$$H_{VE} = 4,18 \cdot \theta_{sat} + \Delta H_V + C_{p_v} \cdot EE \quad [15]$$

En général le troisième terme de l'équation 15, décrivant la surchauffe est négligeable dans les bilans des évaporateurs.

- Enthalpie de vaporisation :  $\Delta H_V$  (kJ. kg<sup>-1</sup>)

La quantité de chaleur en kJ qui doit être fournie à l'unité de masse (kg) de liquide, préchauffé à sa température d'ébullition pour le faire passer à l'état de vapeur saturante.

Par exemple  $\Delta H_V$  pour l'eau pure à 100 °C = 2258 kJ/ kg.

Pour un produit alimentaire, la liaison de l'eau sur les solutés se traduira par une élévation ébulliométrique EE (décrite après), mais on néglige en général l'augmentation d'énergie de vaporisation associée, et l'énergie de surchauffe de la vapeur qu'elle entraîne ( $C_{p_v} \cdot EE$ ).

- conductivité thermique :  $\lambda$  (W. m<sup>-1</sup>. °C<sup>-1</sup>)

La quantité de chaleur en J, par unité de temps (s), qui traverse l'unité de surface m<sup>2</sup> pour une différence de température mesurée normalement à la surface égale à 1 °C par mètre d'épaisseur.

### 1-3-Température d'ébullition

L'ébullition a lieu lorsque la température de produit s'élève jusqu'à une valeur telle que la pression de vapeur en équilibre avec ce produit ( $P_v$ ) devient égale à la pression totale régnant autour du produit :

$$P_v = P_t \quad [\text{Bimbenet et al ; 2002}].$$

La pression de vapeur d'eau d'une solution aqueuse (solution aqueuse de solutés non volatils) est donnée par la loi de Raoult [Lewicki, 2004] :

$$P_{vs} = a_w \cdot P_{sat} \quad [16]$$

où  $a_w$  est l'activité de l'eau dans phase liquide concentrée, et  $P_{sat}$  est la pression de la vapeur saturante qu'aurait l'eau pure à la température  $\theta_L$  du produit.

La liaison de l'eau entraîne une élévation de la température d'ébullition constatée entre la solution ( $L_i$ ) et l'eau pure à la même pression, appelée élévation ébulliométrique EE. L'effet

de (EE) est de diminuer l'écart de température utile au transfert, surtout aux fortes concentrations.

EE peut se calculer à partir de l'équation suivante, pour les solutions diluées en fraction molaire, ou pour  $a_w \geq 0,8$  [Bimbenet et al. 2002]:

$$EE_{Li} = - \frac{\mathcal{R} T_{sat}^2}{\Delta H_e} \ln a_w \quad [17]$$

où :  $\mathcal{R}$ : la constant des gaz parfaits =  $8,314 \text{ (J. mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1})$ ,

$T_{sat}$  : la température d'ébullition d'eau pure en (K),

$\Delta H_e$  : la chaleur latente molaire de vaporisation de l'eau (J/ mol).

Selon la loi de Raoult pour les solutions diluées  $a_w \geq 0,95$ , l'activité de l'eau est égale à la fraction molaire de l'eau dans la solution [Rahman, 1995]:

$$a_w = x_{me} = 1 - x_{ms} = \frac{1 - X_{MS}}{1 - X_{MS} (1 + E)} \quad [18]$$

avec :  $x_{me}$  et  $x_{ms}$  respectivement la fraction molaire d'eau (solvant) et la fraction molaire de soluté,

- $X_{MS}$  est la concentration de matière sèche en poids dans la solution,
- $E$  est le rapport entre la masse molaire d'eau et masse molaire de soluté.

Des équations 17 et 18, et pour  $x_{ms}$  très faible, on peut écrire que  $\ln (1 - x_{ms}) \approx - x_{ms}$  :

$$EE = \frac{\mathcal{R} T_{sat}^2}{18 \Delta H_v} x_{ms} \quad [19]$$

ou

$$EE = \frac{\mathcal{R} T_{sat}^2}{18 \Delta H_v} \cdot \left[ \frac{E X_{MS}}{[X_{MS} (1 + E) - 1]} \right] \quad [20]$$

Par exemple pour une solution de saccharose  $X_{MS} = 10 \%$  qui bout à pression atmosphérique 1013 mbar où  $T_{sat} = 373,13 \text{ K}$ ,  $\Delta H_v = 2257 \text{ J.g}^{-1}$  et  $E = 0,053$  (masse molaire de l'eau = 18 g et masse molaire du saccharose = 342 g), l'équation 20 donne  $EE = 0,17 \text{ }^\circ\text{C}$ . La même

équation 20, donne  $EE = 0,7\text{ }^{\circ}\text{C}$ ,  $1,6\text{ }^{\circ}\text{C}$  et  $4\text{ }^{\circ}\text{C}$  respectivement pour des solutions de saccharose  $X_{MS} = 30, 50$  et  $70\%$  à pression atmosphérique. Même la solution de saccharose concentré à  $X_{MS} = 70\%$  correspondent encore à une fraction molaire d'eau assez élevée :  $x_{me} = 0,89$ .

Pour le sucre, nous pouvons également utiliser l'Abaque d'Othmer et Silvis tirée de l'expérience industrielle, pour trouver la température d'ébullition de jus sucré aux différentes concentrations, pressions et puretés.

Au cours de nos travaux expérimentaux, nous avons mesuré la température de liquide et la pression pour chaque concentration, permettant de calculer  $EE = (\theta_L - \theta_{sat})$ . Nous comparerons plus loin (chap.III) nos résultats pour les solutions de saccharose avec l'Abaque d'Othmer et Silvis et avec les valeurs tirées de l'équation 20.

## 1-4-Nombres adimensionnels

Les nombres adimensionnels sont souvent utilisés dans le domaine du génie des procédés, sous formes de relations entre nombres adimensionnels qui décrivent le problème étudié. Par exemple, dans le cas de l'échange thermique convectif (sans ébullition), entre un fluide s'écoulant dans une conduite circulaire de diamètre  $d$ , et la paroi de ce conduit, l'analyse dimensionnelle établit une relation du type (Dittus-Boelter) :

{Nombre de Nusselt} = fonction de {(nombre de Reynolds) ; (nombre de Prandtl)}

$$Nu = a \cdot Re^b \cdot Pr^c$$

Certains nombres adimensionnels sont également utilisables pour l'estimation du coefficient de transfert de chaleur en ébullition, qui sont :

- Nombre de Reynolds : il caractérise le régime d'écoulement, et représente le rapport entre la force d'inertie et la force de viscosité, défini par [Gregorig, 1965] :

$$Re = \frac{F_I}{F_z} = \frac{L^2 \rho v^2}{L \eta v} = \frac{L \rho v}{\eta} \quad [21]$$

Appliqué au cas du film ruisselant sur la paroi d'un tube, on peut définir un nombre de Reynolds de film en prenant comme dimension caractéristique  $L_h =$  diamètre hydraulique:

$$L_h = 4 \times \frac{\text{Aire conductrice}}{\text{périmètre mouillé}} = 4 \cdot \frac{\pi D \delta}{\pi D} = 4 \delta \quad [22]$$

On sait que  $\bar{v} = \frac{\dot{V}}{\pi D \delta}$  et  $\dot{V} = \frac{\dot{m}}{\rho_L}$

D'où 
$$Re_f = \frac{\rho \bar{v} L_h}{\eta_L} = \frac{4 \rho_L \dot{V} \delta}{\pi D \delta \eta_L} = \frac{4 \rho_L \dot{V}}{\pi D \eta_L} = \frac{4 \dot{m}}{\pi D \eta_L}$$

On définit  $\Gamma = \frac{\dot{m}}{\pi D}$ , appelé « débit massique spécifique » sur le périmètre de tube et alors :

$$\boxed{Re_f = 4 \frac{\Gamma}{\eta_L}} \quad [23]$$

Mais le Reynolds d'écoulement ci-dessus n'est pas le seul pertinent pour décrire les transferts : quand l'ébullition nucléée est développée, les bulles de vapeur créent une agitation liée à leur grossissement et à leur détachement de la surface d'échange de chaleur, et plusieurs autres définissent un nombre de Reynolds lié à l'agitation de nucléation croissante avec le flux de chaleur, par exemple McNelly [Perry's et al. 1984]

$$Re = \frac{\phi \cdot D}{\eta_L \cdot \Delta H_v} \quad [24]$$

On trouvera d'autres définitions du nombre de Reynolds dans les différentes équations établies dans le domaine d'ébullition nucléée, mais toujours en fonction de  $\phi$ .

- Nombre d'ébullition : il caractérise le régime d'ébullition (nucléée ou non nucléée). Il est défini comme suit [Leleu, 1997]:

$$Bo = \frac{\phi}{G \cdot \Delta H_v}$$

avec  $G = \rho \bar{v}$ , est le débit massique par unité de surface du liquide dans le sens d'écoulement ( $\text{kg} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-2}$ ). Dans le cas d'un film ruisselant sur la paroi du tube,

$G = \frac{\Gamma}{\delta}$  et le nombre d'ébullition est défini comme suit :

$$\boxed{Bo = \frac{\phi \cdot \delta}{\Gamma \cdot \Delta H_v}} \quad [25]$$

- Nombre de Nusselt : le nombre de Nusselt caractérise le transfert de chaleur par convection. Il est le rapport entre la densité du flux thermique général et la densité du flux thermique par conduction [Gregorig, 1965] :

$$Nu = \frac{\phi_h}{\phi_\lambda} = \frac{h \cdot \Delta\theta}{\frac{\lambda \cdot \Delta\theta}{L}} = \frac{h \cdot L}{\lambda} \quad [26]$$

où L : est une longueur caractéristique de la situation d'échange.

- Dans le cas du liquide en mouvement dans une cuve ou un tube rempli de liquide, on prend  $L = D$  diamètre de surface de chauffe:

$$Nu = \frac{h \cdot D}{\lambda_L} \quad [27]$$

Cette définition du nombre de Nusselt (équation 27) est utilisée dans certaines des équations adimensionnelles en ébullition nucléée en vase.

- Dans le cas d'un film de liquide ruisselant sur la paroi d'un tube, la dimension caractéristique est l'épaisseur du film  $\delta$ , [Yih, 1986]:

$$\boxed{Nu = \frac{h \cdot \delta}{\lambda_L}} \quad [28]$$

avec  $\delta$  : est l'épaisseur du film ruisselant à la paroi,

$\lambda_L$  :est la conductivité thermique de liquide,

$h$  : est le coefficient de transfert de chaleur,

- Nombre de Kapitza : il dépend des propriétés thermo- physiques du liquide, il est défini comme suit [Krupiczka et al. 2000] :

$$Ka = \frac{\eta_L^4 \cdot g}{\rho_L \cdot \sigma_L^3} \quad [29]$$

- Nombre de Prandtl : le nombre Prandtl est :

$$Pr = \frac{\eta_L \cdot c_{pL}}{\lambda_L} = \frac{v_L}{D_t} \quad [30]$$

On constate que le nombre de Prandtl ne dépend que des constantes physiques caractéristiques du produit (à  $\theta_L$  et  $X_{MS}$  donnés).

## 1-5- Analyses et comparaison des formules de la littérature

Nous allons analyser et comparer les formules de la littérature utilisables pour prévoir le coefficient de transfert de chaleur  $h$  dans les deux différents régimes d'ébullition (nucléée et non nucléée), et dans deux types de mécanisme d'échange de chaleur:

- Les évaporateurs dans lesquels les éléments chauffants sont plongés dans le liquide à évaporer, et sont portés à une température supérieure à celle d'ébullition de liquide, correspondant au mécanisme d'ébullition « en vase » (pool boiling). Par exemple : double enveloppe (Fig.3) ou à serpentins (sans agitateurs), évaporateur à l'extérieur de tubes horizontaux.
- Les évaporateurs dans lesquels le liquide est introduit en haut de l'évaporateur et puis ruissèle en film mince sur la paroi de surface de chauffe. Ce mécanisme d'ébullition en film mince ruisselant sur la paroi de chauffe est appelé « flot tombant » (falling film). Par exemple : évaporateur à film mince ruisselant à l'extérieur de tubes horizontaux, évaporateur à flot tombant dans un tube vertical (Fig. 7).

### 1-5-1-Le coefficient de transfert de chaleur côté liquide en ébullition en vase (pool boiling)

L'ébullition « en vase » est décrite dans de nombreux ouvrages [Hahne et Grigull, 1977, Loncin, 1991, Sacadura, 2000, Delhay, 1990, Incropera et Dewette, 2002]. Bien que d'application limitée dans le domaine de la concentration de liquides alimentaires, cette étude permet de décrire les différents régimes d'ébullition en fonction de la différence de température  $\Delta\theta = (\theta_s - \theta_L)$  d'une façon démonstrative [expérience de Nukiyama]. Dans ce cas, la température de liquide ( $\theta_L$ ) reste pratiquement constante pendant l'ébullition à sa température d'ébullition  $\theta_L$  (inférieure à la température de la paroi  $\theta_s$ ) et il n'existe pas d'agitation ou d'aide mécanique à la convection (pas de pompe ou de mélangeur).

Remarquons que dans le cas où le liquide évaporé est l'eau pure, on peut remplacer  $\theta_L$  par  $\theta_{\text{sat}}$ .

**1-5-1-1- L'expérience de Nukiyama :** cette expérience a été réalisée en 1934 par Nukiyama, en utilisant un fil chauffant plongé dans un liquide porté à sa température d'ébullition [Delhaye, 1990, Incropera et al. 2002]. La puissance thermique ( $\dot{Q}$ ) dissipée dans le fil électrique chauffant est déterminée en mesurant la différence de potentiel aux bornes du fil ( $U$ ) et l'intensité de courant ( $I$ ) par la relation ( $\dot{Q} = U.I$ ). La température du fil ( $\theta_s$ ) supposée uniforme, est déterminée grâce à la connaissance de sa résistance électrique ( $R = U/I$ ), sachant qu'elle varie avec la température ( $\theta_s = f(R)$ ). Dans ce cas le chauffage s'effectue à flux thermique imposé. Sur la figure 9A, nous pouvons distinguer différents régimes d'ébullition selon les valeurs des différences de température ( $\Delta\theta$ ).

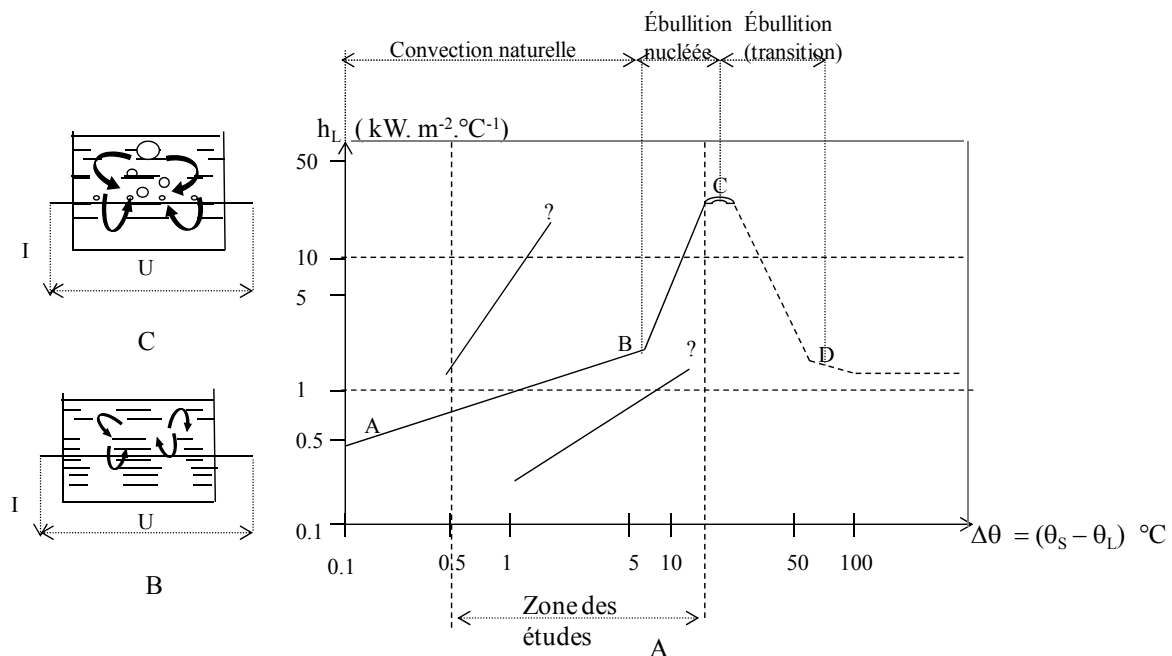


Figure 9 : courbe de Nukiyama pour l'eau pure en ébullition en vase (immergée)

**AB - Ébullition par convection naturelle (ébullition non nucléée) :** pour  $\Delta\theta < 5^\circ\text{C}$  dans l'eau pure saturante. Bien que la température de paroi dépasse de quelques degrés la température d'ébullition, il n'y a pas naissance de bulles de vapeur, et l'évaporation se fait à l'interface liquide – vapeur, au dessus. L'échange entre la paroi chauffante et l'eau se fait par convection naturelle, sans changement d'état sur la surface chaude [Loncin. 1991, Sacadura. 2000, Incropera et al. 2002]. Le transfert est lié à la circulation du liquide sous l'effet de la différence de masse volumique conséquence des gradients de température (en l'absence d'agitation mécanique)

(Fig. 9B). Dans ce cas,  $h$  varie en fonction de  $\Delta\theta$  à la puissance 0,27 ( $h = f(\Delta\theta)^{0,27}$ ) et  $h < 2000 \text{ W. m}^{-2} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$  pour l'eau pure. Ce domaine est peu intéressant pour les évaporateurs dits en vase, parce que  $h$  reste faible.

**BC - Ebullition nucléée :** pour  $5 \leq \Delta\theta \leq 30^\circ \text{ C}$  pour l'eau pure. Dans ce domaine, les bulles de vapeur se forment sur la paroi de chauffe à partir des sites de nucléation. Le nombre  $N$  de sites par mètre carré augmente avec le flux  $\phi$ , et est donné par la formule empirique suivante [Sacadura.J.F. 2000]:

$$N = 1,2 \times 10^2 \times \phi^2 \times P \quad [31]$$

avec  $P$  la pression exprimée en bars et  $\phi$  en  $\text{kW. m}^{-2}$ .

L'évaporation à l'interface liquide/vapeur en surface de la bulle, entraîne la croissance de la bulle, et le refroidissement local des couches liquides surchauffées contre la paroi chaude. Le diamètre des bulles de vapeur en croissance augmente en fonction de la racine carrée du temps, comme suit [Hahne et Grigull, 1977] :

$$D = K \times \Delta\theta \times (\lambda_L \times \rho_L \times C_{pL})^{\frac{1}{2}} \frac{\sqrt{t}}{\Delta H_v \times \rho_v} \quad [32]$$

on peut trouver différentes valeurs de  $K$  dans la littérature, par exemple :

$$K = 2 \pi \text{ Forster – Zuber, 1955}$$

$$K = \pi \text{ Cole – Shulman, 1966}$$

$$K = 5 \times \text{Pr Cooper, 1965}$$

Les bulles de vapeur se détachent de la paroi chauffante en provoquant une augmentation de la convection générale, et au niveau de la surface d'échange de chaleur, ce qui augmente  $h$  substantiellement [Stephan et al. 2004]. La taille limite de détachement des bulles de vapeur de la paroi de chauffe est évaluable du point de vue statique (hors croissance, hors écoulement liquide) : les bulles de vapeur sont soumises à deux forces, qui sont la force de tension de surface ( $F_\sigma$ ) et forces de flottabilité ( $F_F$ ) (Fig.10).

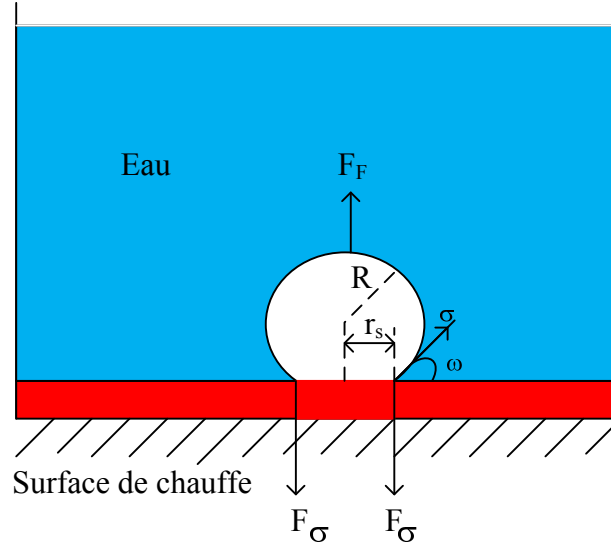


Figure 10 : Forces exercées sur la bulle de vapeur en statique.

Le rayon ( $R_D$ ) de bulle de vapeur à l'instant du détachement correspond au moment où la force de flottabilité  $F_F$  devient égale de la force de la tension superficielle exercée sur le rayon d'attache  $r_s$  (en projection verticale, angle  $\omega$ )  $F_F = F_\sigma$  soit :

$$\left(\frac{4}{3} \cdot \pi \cdot R_D^3\right) \cdot g \cdot (\rho_l - \rho_v) = 2 \pi r_s \sigma_L \sin \omega$$

Le rayon de détachement se déduit de ces considérations, selon Fritz [Hahne et Grigull, 1977]:

$$R_D = 0,0104 \omega \sqrt{\frac{\sigma_L}{g(\rho_L - \rho_v)}} \quad [33]$$

avec  $R_D$  : le rayon de détachement et  $\omega$ : l'angle de contact.

En vase, les bulles ont une forme plutôt sphérique lorsque les forces de tension de surface prédominent, et tendent vers une forme hémisphérique lorsque les forces d'inertie prédominent. On peut penser qu'en film mince circulant, la forme est modifiée par la faible épaisseur du film ruisselant, et par l'écoulement du liquide. La fréquence d'émission des bulles ( $f$ ) n'est pas uniforme pour tous les sites, et elle dépend du régime de croissance de la bulle. En général, on admet que le produit ( $f \times R_D$ ) est constant. Zuber a donné l'expression suivante [Lallemand, 2005]:

$$f \times R_D = 0,3 \left( \frac{\sigma_L g (\rho_L - \rho_v)^{\frac{1}{4}}}{\rho_L^2} \right) \quad [34]$$

Pour l'eau à la pression atmosphérique, les bulles ont un diamètre de détachement ( $D_D = 2 R_D$ ) de l'ordre de 1 à 2,5 mm et leur fréquence ( $f$ ) est de 20 à 40 s<sup>-1</sup> [Bonjour et al, 1997, Lallemand, 2005].

Dans le domaine BC, les bulles de vapeur montent à l'interface liquide – vapeur, en créant une forte convection dans le liquide qui augmente le coefficient de transfert de chaleur en régime nucléée (voire fig.9C). Dans ce régime nucléé,  $h$  varie en fonction de  $\Delta\theta$  à la puissance ( $N$ ) ( $h = f(\Delta\theta)^N$ ). Pour l'eau pure à la pression atmosphérique :

$$3 < N < 3,4$$

$$\text{ou } h = f(\phi)^{0,75 \text{ à } 0,77}.$$

Le flux de chaleur maximal appelé critique, est obtenu à  $\Delta\theta \approx 30$  °C pour l'eau pure, et de l'ordre de  $\phi = 1 \text{ MW.m}^{-2}$  à pression atmosphérique [Incropera et al. 2002].

**CD- Ebullition de transition** : au-delà du point C, le flux diminue, avec un minimum local en D, où le fil chauffant est périodiquement baigné par le liquide, du fait d'une « gaine » de vapeur qui isole le fil chauffant [Delhaye, 1990, Loncin, 1991, Incropera et al. 2002]. Dans ce domaine,  $h$  diminue, ce qui n'est pas intéressant pour un évaporateur ( $h$  faible et  $\Delta\theta$  est très élevé).

**Remarque** : on a ajouté sur la figure 9A deux courbes avec points d'interrogations correspondant aux trois questions suivantes :

1. Comment pouvons-nous d'estimer  $h$  pour un liquide alimentaire (au lieu de l'eau pure), pour les différentes valeurs des variables ( $\eta$ ,  $\Delta\theta$ , etc.) de l'équation 3?
2. A quelle différence de la température ( $\Delta\theta$ ) l'ébullition nucléée commence-t-elle pour un produit alimentaire donné (lait, jus d'orange, etc.) ?
3. Quelle est la différence pour  $h$ , entre l'ébullition en vase et l'ébullition dans un évaporateur à flot tombant (non nucléée et nucléée) ?

Nous allons maintenant analyser et comparer diverses formules tirées de la littérature, pour explorer comment elles répondent à ces questions : six équations pour estimer  $h$  en ébullition en vase (en régime nucléé), puis dix équations pour estimer  $h$  dans un évaporateur à flot tombant (en régime non nucléé et nucléé).

### 1-5-1-2 Corrélations pour l'estimation de h en ébullition nucléée en vase

Les corrélations citées sont généralement présentées sous une forme adimensionnelle, et ont été établies pour certains liquides, et à différentes pressions. Comme elles n'utilisent pas exactement les mêmes paramètres physiques, ni avec les mêmes exposants, nous les avons réécrites sous une forme dimensionnelle, pour comparer les variables utilisées et leurs exposants (tableau 1).

|   | Dimensionnelle corrélations                                                                                                                                                                                                                                 | $h_L = f(\Delta\theta)^N$<br>N |
|---|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------|
| 1 | $h = 0,225 \cdot \phi^{0,69} \cdot \lambda_L^{0,31} \cdot C p_L^{0,69} \cdot \sigma_L^{-0,31} \cdot \Delta H_v^{-0,69} \cdot [\rho_L - \rho_v]^{0,33} \cdot \rho_v^{-0,33} \cdot p^{0,31}$                                                                  | 2,23                           |
| 2 | $h = 1,464 \cdot C_{sf}^{-1} \cdot \phi^{0,667} \cdot \lambda_L^{1,7} \cdot C p_L^{-0,7} \cdot \sigma_L^{-0,167} \cdot \Delta H_v^{-0,667} \cdot (\rho_L - \rho_v)^{-0,167} \cdot \eta_L^{-1,367}$                                                          | 2                              |
| 3 | $h = 1112,5 \cdot \phi^{0,7} \cdot \lambda_L^{0,3} \cdot C p_L^{-0,1} \cdot \sigma_L^{-0,15} \cdot \Delta H_v^{0,1} \cdot \rho_v^{0,1} \cdot \rho_L^{-0,1} \cdot (\rho_L - \rho_v)^{0,15} \cdot \eta_L^{-0,8} \cdot \eta_v^{0,8} \cdot \theta_{Sat}^{-0,8}$ | 2,33                           |
| 4 | $h = 0,38 \cdot C_G \cdot \phi^{0,7} \cdot \lambda_L^{0,6} \cdot C p_L^{0,4} \cdot \sigma_L^{-0,425} \cdot \Delta H_v^{-0,7} \cdot \rho_v^{-0,7} \cdot \rho_L^{0,275} \cdot \eta_L^{-0,3} \cdot p^{0,85} \cdot D^{-0,3}$                                    | 2,33                           |
| 5 | $h = 1,33 \cdot \phi^{0,74} \cdot \lambda_L^{0,37} \cdot C p_L^{0,63} \cdot \Delta H_v^{-0,74} \cdot \rho_v^{-0,05} \cdot \rho_L^{0,74} \cdot \rho_{at}^{-0,69} \cdot \eta_L^{-0,11}$                                                                       | 2,85                           |
| 6 | $h = 0,69 \cdot 10^{-3} \cdot \phi^{0,7} \cdot \lambda_L^{0,65} \cdot C p_L^{0,35} \cdot \sigma_L^{-0,5} \cdot \Delta H_v^{-0,7} \cdot \rho_v^{-0,7} \cdot \rho_L^{0,7} \cdot (\rho_L - \rho_v)^{-0,2} \cdot \eta_L^{-0,35} \cdot p^{0,7}$                  | 2,33                           |

|                  | 1                   | 2                 | 3                 | 4                 | 5                 | 6                 |
|------------------|---------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|-------------------|
| Référence        | Perry's et al. 1984 | Hahne et al. 1977 | Hahne et al. 1977 | Hahne et al. 1977 | Hahne et al. 1977 | Hahne et al. 1977 |
| Noms des auteurs | McNelly             | Rohsenow          | Gluchenko         | Gilmour           | Miyauchi et Yagi  | Kutatalidze       |

Tableau 1 : corrélations sous forme dimensionnelle pour l'estimation de h en ébullition nucléée en vase.

Toutes les équations du tableau 1 sont relatives aux liquides et aux conditions expérimentales utilisées fixent leur domaine de validité :

- Equation de McNelly : pour l'eau et certains liquides chimiques en ébullition en vase, pour un tube de chauffage horizontal immergé dans le liquide étudié.
- Equation de Rohsenow : pour certains liquides (eau, tetra-chloromethane, benzene, n-pentane, éthanol, isopropanol, n-butanol- et les solutions de  $K_2CO_3$ ), le domaine de

pression allant de 1 à 170 bar pour différentes surfaces de chauffage (chrome, nickel, cuivre, acier inoxydable, etc.) en ébullition en vase.

- Equation de Glushchenko : pour l'eau (0,98- 200 bar) et pour l'éthanol (0,98- 53,5 bar) en ébullition en vase.
- Equation de Gilmour : pour différents liquides et différents surfaces de chauffage en ébullition en vase.
- Equation de Miyauchi et Yagi : pour certains liquides (eau, éthanol, méthanol, benzène, n- hexane, n-heptane et tetrachlorméthane) et à pression (0,21 -1 bar) pour une surface de chauffage horizontale, en ébullition en vase.
- Equation de Kutateladze : développée à partir d'une base de données expérimentale pour différentes surfaces de chauffage, différents produit et à différents pressions.

Examinons par exemple, la corrélation de McNelly [réf 1, tableau 1] donnée ci-dessous sous sa forme originale adimensionnelle, et présentée comme s'appliquant à l'ébullition nucléée en vase (Perry's et al. 1984) :

$$Nu = 0,225 \times Pr^{0,69} \times \left( \frac{\phi.D}{\eta_L \cdot \Delta H_v} \right)^{0,69} \times \left( \frac{P.D}{\sigma} \right)^{0,31} \times \left( \frac{\rho_L}{\rho_v} - 1 \right)^{0,33} \quad [35]$$

Nous remarquons que la viscosité de liquide ( $\eta_L$ ) et le diamètre (D) du tube semblent présents dans l'équation (35). Mais en fait, selon les définitions des nombres de Nu et Pr (équations 27 et 30), ces variables disparaissent dans la forme dimensionnelle développée de l'équation 35 (Eq.1 tableau 1), sauf pour une très petite contribution de la viscosité du liquide implicite dans la variable P qui fixe  $\theta_L$  (la pression P, avec un exposant positif 0,31, exprimant que la viscosité diminue légèrement si la pression augmente, avec un effet positif sur h). La disparition de fait de la variable D dans l'équation est « acceptable à la rigueur », parce qu'en ébullition nucléée, la convection est principalement causée par la croissance et l'ascension des bulles de vapeur pilotée par  $\phi$ , et peu dépendante de la taille caractéristique D. Mais par contre, on ne peut pas accepter la disparition de la viscosité ( $\eta_L$ ), dont l'effet sur h est important et bien connu, en particulier pour un liquide alimentaire dont la viscosité augmente avec la concentration en matière sèche (ex ; viscosité de l'eau à 100 °C  $\eta_L = 0,279 \cdot 10^{-3}$  (Pa.s), et viscosité de jus sucré  $X_{MS}$  (70 %) =  $5,1 \cdot 10^{-3}$  (Pa.s), soit 18 fois plus forte). On peut en déduire que l'équation 1 en (tableau 1) et/ou l'équation [35] n'est pas fiable pour estimer h

pour un liquide alimentaire, dans lequel la viscosité varie beaucoup avec la concentration de matière sèche.

Une autre corrélation classique est celle de Rohsenow [2, tableau1] valable dans la zone d'ébullition nucléée (en vase) pour une surface chauffante plane ou tubulaire [Hahne et al. 1977, Delhaye, 1990, Sacadura, 2000, Incropera et al, 2002]. Sa forme adimensionnelle est :

$$\frac{C_{PL} \Delta\theta}{\Delta H_V} = C_{sf} \left[ \frac{\phi}{\eta_L \times \Delta H_V} \times \sqrt{\frac{\sigma}{g(\rho_L - \rho_V)}} \right]^{0,33} \times \left( \frac{\eta_L \times C_{pL}}{\lambda_L} \right)^n \quad [36]$$

où le coefficient  $C_{sf}$  est une constante numérique dépendant principalement de l'état de surface et de la nature du liquide, et l'exposant  $n$  dépend du type de fluide,

Nous pouvons voir quelques valeurs de  $C_{sf}$  dans la table suivante [Incropera, et al 2002] et [Tiwari, et al, 2003] :

| Surface – fluide                  | $C_{sf}$             | $n$                    |
|-----------------------------------|----------------------|------------------------|
| Eau -Cuivre                       |                      |                        |
| Poli                              | 0,013                | 1,0                    |
| Eau – acier inoxydable            |                      |                        |
| Gravé chimique                    | 0,013                | 1,0                    |
| poli mécanique                    | 0,013                | 1,0                    |
| poli                              | 0,006                | 1,0                    |
| Eau- cuivre jaune                 | 0,006                | 1,0                    |
| Eau – nickel                      | 0,006                | 1,0                    |
| Eau – platine                     | 0,013                | 1,0                    |
| n- Pentane – cuivre poli          | 0,0154               | 1,7                    |
| Benzène – chrome                  | 0,0101               | 1,7                    |
| éthyle alcool – chrome            | 0,0027               | 1,7                    |
| jus de sucre de canne – aluminium | 0,92(valeur moyenne) | -0,167(valeur moyenne) |

Tableau 2 : certaines valeurs du coefficient  $C_{sf}$  et de l'exposant  $n$  de l'équation (36)

On retrouve dans les équations 35 et 36 une forme à base de nombres sans dimension de type  $Nu = f(Re, Pr)$  comparable à la corrélation de Dittus-Boelter  $Nu = a \cdot Re^b \cdot Pr^c$  [Bimbenet et al. 2002]. Mais leurs définitions sont différentes des nombres classiques : par exemple dans les équations 35 et 36, le nombre de Reynolds est défini en fonction de flux de chaleur, dans le but de représenter l'agitation due à l'ébullition nucléée en vase liée à  $\phi$ , au lieu d'une vitesse de circulation du liquide.

$$Re_{Rohsenow} = \frac{\Phi}{\eta_L \cdot \Delta H_v} \sqrt{\frac{\sigma_L}{g \cdot (\rho_L - \rho_v)}}$$

$$Re_{McNelly} = \frac{\Phi \cdot D}{\eta_L \cdot \Delta H_v}$$

Par ailleurs les définitions sont différentes entre équations:

$$Nu_{Rohsenow} = \frac{Cp_L \cdot (\theta_p - \theta_L)}{\Delta H_v} = \frac{Cp_L \cdot \phi}{\Delta H_v \cdot h}$$

$$Nu_{McNelly} = Nu_{Dittus-Boelter} = \frac{h D}{\lambda_L}$$

D'après les définitions des nombres sans dimension ci-dessus, on peut écrire les équations 35 et 36 comme suit :

$$McNelly : \quad Nu = 0,225 \cdot Re_{McNelly}^{0,69} \cdot Pr^{0,69} \cdot \left( \frac{P \cdot D}{\sigma} \right)^{0,31} \cdot \left( \frac{\rho_L}{\rho_v} - 1 \right)^{0,33}$$

$$Rohsenow : \quad Nu_{Rohsenow} = C_{sf} \cdot Re_{Rohsenow}^{0,33} \cdot Pr^n$$

### 1-5-1-2 Comparaison entre les équations :

A partir du tableau 1, nous pouvons comparer les six différentes corrélations en ébullition nucléée en vase, quant aux variables utilisées dans chaque équation et à leurs exposants, évaluant la sensibilité de h à chaque variable.

Dans toutes les équations du tableau 1, h varie en fonction de  $\phi$  selon la relation suivante :  $h = f(\phi)^N$ , avec N variant de 2 à 2,85 entre les équations, au lieu de 3 à 3,4 par la courbe de Nukiyama (en régime nucléé) pour l'eau pure.

Pour évaluer la dispersion entre les valeurs de h calculées à partir de chaque équation du tableau 1, nous avons calculé le h prédit pour l'eau pure à pression atmosphérique (1013 mbar), pour les mêmes propriétés thermo-physiques (présentées en tableau 3) et à même flux imposé  $\phi = 30 \text{ kW} \cdot \text{m}^{-2}$ . Les résultats sont présentés en figure 11.

| Thermo physique propriétés           | Eau pure à 100°C       | Unité                                 |
|--------------------------------------|------------------------|---------------------------------------|
| $\rho_L$                             | 958                    | kg.m <sup>-3</sup>                    |
| $\lambda_L$                          | 0.68                   | W. m <sup>-1</sup> . °C <sup>-1</sup> |
| $C_{pL}$                             | 4210                   | J.kg <sup>-1</sup> . °C <sup>-1</sup> |
| $\eta_L$                             | 2.79*10 <sup>-4</sup>  | Pa.s                                  |
| $\sigma_L$                           | 5.89 *10 <sup>-2</sup> | N.m <sup>-1</sup>                     |
| $\rho_v$                             | 0.6                    | kg.m <sup>-3</sup>                    |
| $\Delta H_v$                         | 2260*10 <sup>3</sup>   | J.kg <sup>-1</sup>                    |
| P                                    | 1.01*10 <sup>5</sup>   | Pa                                    |
| $\theta_L$                           | 100                    | °C                                    |
| $\eta_v$                             | 1.2 *10 <sup>-5</sup>  | Pa.s                                  |
| $C_{sf}$ Rohsenow (acier inoxydable) | 1.3*10 <sup>-2</sup>   |                                       |
| G Gilmour                            | 1.35 *10 <sup>-4</sup> |                                       |

Tableau 3 : les propriétés thermo-physiques de l'eau pure à 100 °C

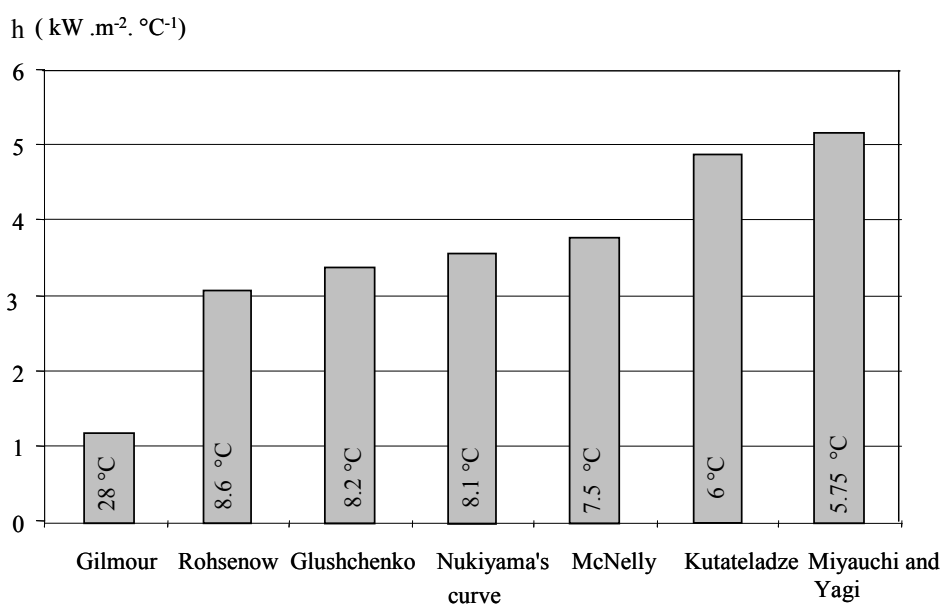


Figure 11 : Valeurs de h calculées à partir des équations du tableau 1, pour l'eau pure à pression atmosphérique et à  $\phi = 30$  (kW. m<sup>-2</sup>) [pour l'équation Gilmour D = 0,0254 m], ébullition en vase.

Le fait de comparer les équations à même flux de chaleur pour calculer h, conduit à des écarts de température  $\Delta\theta = (\theta_s - \theta_L)$  différents dans chaque cas. Les valeurs de  $\Delta\theta$  correspondantes sont indiquées en bas de chaque rectangle (figure 11). Si on comparait à  $\Delta\theta$  identique, on aurait des flux de chaleur différents entre les équations, avec d'autres valeurs de h, mais la dispersion subsisterait.

D'après la figure 11, nous pouvons remarquer que la dispersion en valeurs de  $h$  entre les équations (tableau 1) est dans un rapport de 1 à 5 pour un même produit, aux propriétés aussi bien connues que celles de l'eau pure.

Comme le flux de chaleur  $\phi$  est affecté sensiblement du même exposant entre toutes les équations du tableau 1 (de 0,667 à 0,74), la dispersion constatée sur  $h$  est donc surtout liée soit à la présence des autres variables, soit à leurs exposants qui sont assez différents entre équations. Par exemple pour la viscosité, on a calculé  $h$  pour cinq différentes valeurs de viscosités, les autres propriétés thermo-physiques restant celles de l'eau pure à 100 °C, selon figure 12.

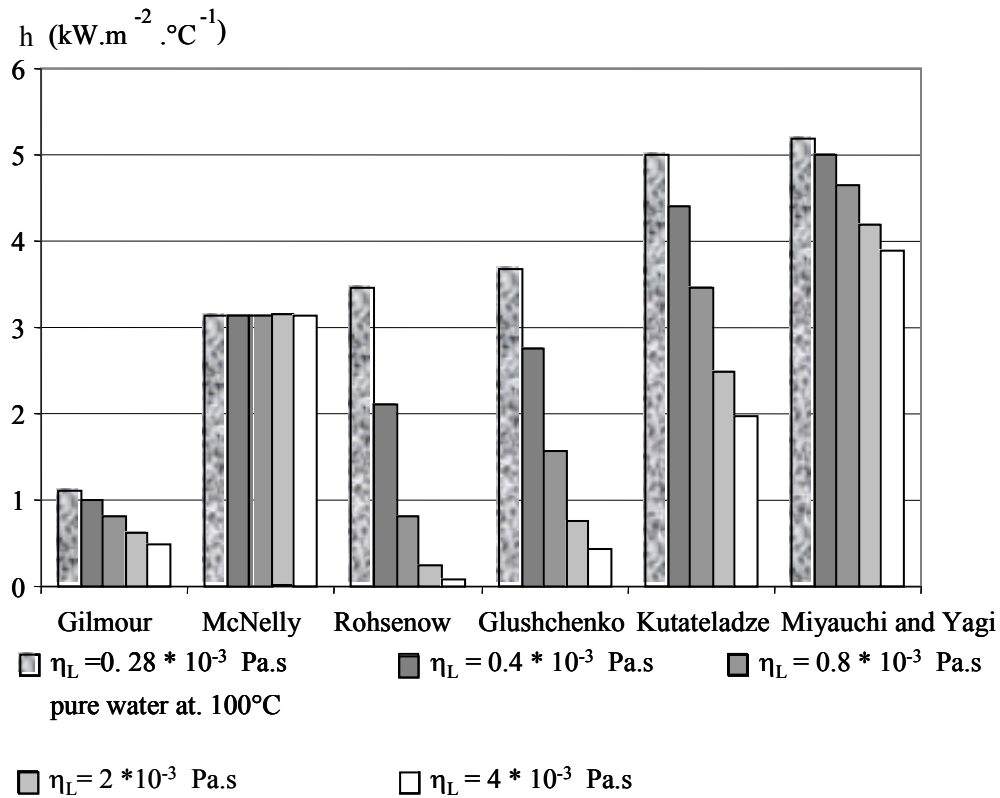


Figure 12 : dispersion de valeurs  $h$  à cause de l'effet de la viscosité entre les équations en tableau 1 et pour cinq différents viscosités.

Il apparaît que la dispersion des valeurs de  $h$  entre les équations appliquées aux « produits visqueux » est encore plus grande que pour l'eau pure. Par exemple, pour  $\eta_L = 4 \cdot 10^{-3}$  (Pa.s), la dispersion de valeur de  $h$  entre les équations en tableau 1 est dans un rapport de 1 à 40 entre extrêmes (de 90 à 3900 W. m<sup>-2</sup>. °C<sup>-1</sup>), et très élevée de toute façon.

Parmi les différentes propriétés thermo-physiques du liquide, c'est la viscosité qui a le plus fort effet sur  $h$  soit à cause de sa grande plage de variation, soit à cause de son grand exposant négatif dans les équations. La viscosité dans l'équation de Rohsenow (Eq. 2 du tableau 1) donne le plus grande exposant à  $\eta_L$  (-1,37) parmi les équations du tableau, et l'équation de Miyauchi et Yagi le plus faible (-0,11).

Dans le tableau1, tous les autres paramètres que  $\phi$  et  $\eta_L$  existants dans ces équations ( $\rho_L$ ,  $\lambda_L$ ,  $\sigma_L$ ,  $\Delta H_v$ , etc.) ont seulement un faible effet sur  $h$ . Par exemple, si nous comparons par simulation l'effet relatif des variables ( $\eta_L$ ,  $\rho_L$ ,  $\lambda_L$ ) sur  $h$  dans le cas du lait, pour deux concentrations différentes en matière sèche ( $X_{MS} = 5\%$  et  $30\%$ ) à  $65\text{ }^\circ\text{C}$ , et en utilisant l'exemple de l'équation de Glushenko (eq. 3 tableau 1) : il apparaît que  $h$  est divisé par 3 sous l'effet de la viscosité  $\eta_L$  seule, mais  $\rho_L$  et  $\lambda_L$  n'ont presque pas d'effet sur  $h$  selon cette équation (voir tableau 4).

| Paramètre<br>Propriété       | $\rho_L$       | $\sigma_L$ | $\eta_L$ |
|------------------------------|----------------|------------|----------|
| Lait $X_{MS} = 5\%$          | 993            | 0,041      | 0,00055  |
| Lait $X_{MS} = 30\%$         | 1058           | 0,046      | 0,0024   |
| Taux de variation            | 1,05           | 1,13       | 4,36     |
| Exposant en eq.<br>Glushenko | $\approx 0,05$ | -0,15      | - 0,8    |
| $\frac{h_{30\%}}{h_{5\%}}$   | 1,003          | 0,98       | 0,31     |

Tableau 4 : Comparaison des effets de ( $\rho_L$ ,  $\sigma_L$ ,  $\eta_L$ ) sur la valeur de  $h$  calculée par l'équation de Glushenko, quand  $X_{MS}$  du lait augmente de 5 à 30 %, à  $65\text{ }^\circ\text{C}$  et à  $\phi = 30\text{ kW.m}^{-2}$ .

La dispersion des valeurs de  $h$  entre les équations utilisées pour les liquides visqueux est donc très élevée, et l'utilisation sans précautions de ces équations pour estimer  $h$  pour les liquides alimentaires n'est pas fiable. Il faut s'interroger sur la validité de chaque équation pour estimer  $h$  dans chaque cas particulier. Par exemple [Tiwari et al, 2003] ont modifié les

exposants ( $n$ ) et le coefficient ( $C_f$ ) de l'équation Rohsenow pour améliorer sa validité dans la prévision de  $h$  pour les jus sucrés de canne en ébullition nucléée (voir tableau 2).

Rappelons que les équations du tableau 1 sont dédiées à l'ébullition en vase, correspondant aux évaporateurs fonctionnant avec une surface d'échange immergée et en régime d'ébullition nucléée. Mais l'agitation de nucléation étant prépondérante devant l'écoulement quand la nucléation a lieu, il nous a semblé intéressant de comparer l'ébullition en vase (ci-dessus) au cas du flot tombant, qui reste le sujet principal de notre thèse. Nous allons maintenant analyser et comparer dix équations existant en bibliographie, pour estimer  $h$  dans le cas des évaporateurs à tubes verticaux en flot tombant.

### **1-5-2 - Coefficient de transfert de chaleur $h$ dans les évaporateurs à tubes verticaux en flot tombant.**

L'évaporateur à flot tombant (falling film) est très utilisé dans les IAA pour concentrer les liquides alimentaires (jus sucré, jus de fruit, lait) [Yih, 1986]. Dans ce type d'appareil, le liquide à évaporer est introduit dans l'évaporateur dans le haut des tubes verticaux, en utilisant un dispositif distributeur permettant d'alimenter tous les tubes. Le liquide et la vapeur émise descendent vers le séparateur de vapeur, placé en bas (figure 5). Pour que le liquide à évaporer mouille toute la surface du tube, il faut un débit de liquide suffisant exprimé ici par le débit massique rapporté au périmètre du tube  $\Gamma$  ( $\text{kg} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ ).

Les avantages de l'évaporateur à flot tombant sont [Yih, 1986 ; Chen et al. 1997]:

- faible temps de séjour de liquide sur la paroi chauffante (comparé avec autres types d'évaporateurs),
- la valeur de  $h$  est élevée, même à faible  $\Delta\theta$  ou  $\phi$  (comparée avec les valeurs de  $h$  en ébullition en vase ou selon courbe de Nukiyama), ce qui permet d'augmenter le nombre d'effets (économie d'énergie) sans augmenter trop la température de l'effet le plus chaud. La compression mécanique de vapeur (CMV) est aussi une technique demandant de faibles  $\Delta\theta$ . Pouvoir diminuer la température de l'effet le plus chaud est aussi favorable pour limiter l'encrassement pour les liquides riches en protéines (lait, etc.).

Pour ces raisons l'évaporateur à flot tombant est recommandé pour concentrer les liquides alimentaires dits « thermosensibles » [Sangrame et al, 2000] (dénaturation de protéines, perte d'activité vitaminique, coloration, etc.).

Pour ce type d'évaporateur, nous pouvons également distinguer deux types d'ébullition [Yih, 1986; Chen et al. 1997 ; Krupiczka et al. 2002] :

- ✚ Ebullition non nucléée : ce régime d'ébullition a lieu à faible  $\Delta\theta$ , mais les conditions de la transition du régime non nucléé vers le nucléé n'est pas clairement définie dans la littérature « en général ». En ébullition non nucléée, l'évaporation a lieu à l'interface liquide à évaporer/vapeur, et  $h$  est alors peu dépendante de  $\phi$  ou  $\Delta\theta$ , mais dépend des propriétés thermo-physiques ( $\lambda$ ,  $\eta$ ,  $\rho$ ,  $C_p$ )<sub>L</sub> du liquide, du débit spécifique ( $\Gamma$ ) et du régime d'écoulement constaté (laminaire ou turbulent).
- ✚ Ebullition nucléée : ce régime commence à plus haute valeur de  $\Delta\theta$  ou  $\phi$ , quand les bulles de vapeur se forment dans des sites de nucléation en nombre limité sur la surface de chauffe. Dans ce régime,  $h$  dépend aussi de  $\phi$  ou  $\Delta\theta$ , en plus des propriétés thermo-physiques du liquide (surtout la viscosité), et assez peu du régime d'écoulement fixé par  $\Gamma$ , nous étudierons ce point pour des liquides Newtonien et non-Newtonien.

#### **1-5-2-1 Corrélations pour l'estimation $h$ en ébullition non nucléée** (dans un évaporateur à flot tombant).

Nous avons déjà défini les nombres adimensionnels ( $Re_f$ ,  $Pr$  et  $Nu$ ) utilisables dans ce cas (équations 23, 28 et 30). Selon la valeur du nombre de Reynolds en film  $Re_f$ , nous pouvons distinguer trois régimes d'écoulement selon [Bird et al. 1960], mais qui ne décrivent pas spécifiquement la situation d'ébullition :

1. Ecoulement laminaire ( $Re_f < 25$ ) ;
2. Ecoulement laminaire avec vagues (wavy-laminar) ( $Re_f < 1000$  à  $2000$ ) ;
3. Ecoulement turbulent ( $Re_f > 1000$  à  $2000$ ) ;

### 1-5-2-1-1-Calcul de l'épaisseur de film ( $\delta$ ) en régime laminaire

En régime laminaire,  $h$  dépend principalement de l'épaisseur  $\delta$  (m) du film ruisselant sur la paroi qu'on peut évaluer à partir de sa viscosité selon Bird, comme suit, dans une zone de régime d'écoulement établi :

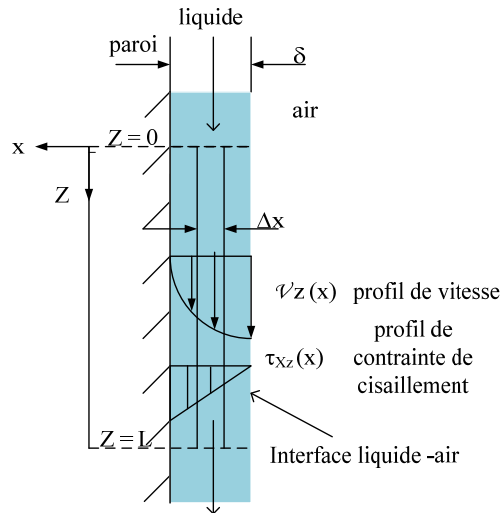


Figure 13 : Schéma représentatif de l'écoulement en régime laminaire, (profil des vitesses  $v$  – profil des contraintes  $\tau$ ).

On considère l'écoulement du fluide, en régime permanent, sur une surface plane verticale comme dans la figure [13], et on suppose que la viscosité et la masse volumique du fluide sont constants (liquide Newtonien), et sans ébullition. On fait l'étude en régime d'écoulement établi, assez loin de l'entrée et de la sortie du fluide, sur la longueur  $L$  telle que la composante de la vitesse  $v_z$  soit constante dans la direction  $z$ . On écrit le bilan des forces sur un système d'épaisseur  $\Delta x$ , entre  $z = 0$  et  $z = L$ , et pour la largeur  $W$  dans le sens  $y$ . Les différentes forces dans l'élément sont:

1. La force de frottement (à  $x$ ) :  $(LW) (\tau_{xz}) \big|_{(x)}$
2. La force de frottement à  $(x+\Delta x)$  :  $(LW) (\tau_{xz}) \big|_{(x+\Delta x)}$
3. La force d'inertie à  $z=0$  :  $(W \Delta x v_z) (\rho v_z) \big|_{(z=0)}$
4. La force d'inertie à  $z = L$  :  $(W \Delta x v_z) (\rho v_z) \big|_{(z=L)}$
5. La force de gravité:  $(LW\Delta x) (\rho g)$

En régime permanent, la conservation de la quantité de mouvement sur l'élément ( $\Delta L$ ,  $\Delta x$ ) s'écrit :

$$(LW)(\tau_{xz})|_x - (LW)(\tau_{xz})|_{x+\Delta x} + W\Delta x \rho v_z^2|_{z=0} - W\Delta x \rho v_z^2|_{z=L} + L.W\Delta x.\rho.g = 0 \quad [37]$$

Si la composante de la vitesse  $v_z$  ne dépend pas à la direction  $z$ , on peut annuler les termes 3 et 4 de l'équation 37, puis on divise l'équation par  $(L W \Delta x)$  et on fait tendre  $\Delta x \rightarrow 0$  :

$$\lim_{\Delta x \rightarrow 0} \left( \frac{\tau_{xz}|_{x+\Delta x} - \tau_{xz}|_x}{\Delta x} \right) = \rho g$$

On peut écrire l'équation précédente comme suit :

$$\frac{d(\tau_{xz})}{dx} = \rho g \quad [38]$$

L'intégrale de l'équation 38 est :  $\tau_{xz} = \rho g x + C_1$

Si on pose les conditions de l'interface liquide / gaz ou vapeur (à  $x = 0$ ,  $\tau_{xz} = 0$ ), l'équation précédente, devient :

$$\tau_{xz} = \rho g x \quad [39]$$

Le profil de contrainte de cisaillement  $\tau$  est linéaire (figure 13). Si le fluide ruisselant sur la paroi est Newtonien, la contrainte de cisaillement dépend du gradient de vitesse comme suit :

$$\tau_{xz} = -\eta \frac{dv_z}{dx} \quad [40]$$

Des équations 39 et 40 on peut écrire :

$$dv_z = -\left(\frac{\rho g}{\eta}\right) x dx \quad [41]$$

avec l'intégration de l'équation 41 :

$$v_z = -\left(\frac{\rho g}{2\eta}\right) x^2 + C_2$$

La condition limite de l'intégration est à  $x = \delta$   $v_z = 0$

$$v_z = \frac{\rho g \delta^2}{2\eta} \left[ 1 - \left( \frac{x}{\delta} \right)^2 \right]$$

On décrit un profil de vitesse parabolique. La vitesse moyenne égale :

$$\bar{v}_z = \frac{1}{\delta} \int_0^\delta v_z dx = \frac{\rho g \delta^2}{2\eta} \int_0^1 \left[ 1 - \left( \frac{x}{\delta} \right)^2 \right] d\left( \frac{x}{\delta} \right)$$

alors

$$\bar{v}_z = \frac{\rho_L g \delta^2}{3\eta_L} \Rightarrow \delta = \sqrt{\frac{3\eta_L \bar{v}}{\rho_L g}}$$

Le débit volumique est lié à la vitesse moyenne comme suit:

$$\dot{V} = \bar{v} \cdot S = \frac{\rho_L g W \delta^3}{3\eta_L} \Rightarrow \delta = \sqrt[3]{\frac{3\eta_L \dot{V}}{\rho_L g W}} \quad [42]$$

avec  $S = W \cdot \delta$

Si on applique la relation 42 à un liquide ruisselant dans un tube vertical, en négligeant l'effet

de la courbure, avec  $W = \pi D$  avec  $D$  le diamètre du tube, et avec  $\Gamma = \frac{\dot{V}\rho}{W}$ , on obtient

l'épaisseur du film  $\delta$  ruisselant, selon :

$$\delta = \sqrt[3]{\frac{3\eta_L \Gamma}{\rho_L^2 g}} \quad [43]$$

Rappelons que cette équation précédente n'est valable qu'en régime laminaire, et pour un fluide Newtonien.

- **Cas d'un liquide non-Newtonien :** (rhéo-fluidifiant ou rhéo-épaississant selon la loi de puissance). Dans ce cas, la contrainte est liée au taux de cisaillement selon:

$$\tau_{xz} = -k \left( \frac{dv_z}{dx} \right)^n \quad [44]$$

En régime laminaire, partant des mêmes équations 39 et 44:

$$dv_z = - \left( \frac{\rho g}{k} \right)^{\frac{1}{n}} x^{\frac{1}{n}} dx \quad [45]$$

L'intégration de l'équation 45:

$$v_z = - \left( \frac{\rho g}{k} \right)^{\frac{1}{n}} \left( \frac{1}{\frac{1}{n} + 1} \right) x^{\frac{1}{n} + 1} + C_2$$

La condition limite de l'intégration est à  $x = \delta$   $v_z = 0$

$$v_z = \left( \frac{1}{\frac{1}{n} + 1} \right) \left( \frac{\rho g}{k} \right)^{\frac{1}{n}} \left[ \delta^{\frac{1}{n} + 1} - x^{\frac{1}{n} + 1} \right] \quad [46]$$

Dans ce cas la vitesse moyenne égale :

$$\bar{v}_z = \frac{1}{\delta} \int_0^\delta v_z dx = \frac{1}{\delta \left( \frac{1}{n} + 1 \right)} \left( \frac{\rho g}{k} \right)^{\frac{1}{n}} \int_0^\delta (\delta^{\frac{1}{n} + 1} - x^{\frac{1}{n} + 1}) dx$$

Alors

$$\bar{v}_z = \left( \frac{1}{\frac{1}{n} + 2} \right) \left( \frac{\rho_L g}{k} \right)^{\frac{1}{n}} \delta^{\frac{1}{n} + 1}$$

Le débit volumique est calculé à partir de l'intégration de la vitesse (eq. 46) dans les deux directions y, x et entre (0, w) et (0,  $\delta$ ) respectivement :

$$\dot{V} = \int_0^w \int_0^\delta \left( \frac{1}{\frac{1}{n} + 1} \right) \left( \frac{\rho g}{k} \right)^{\frac{1}{n}} \left[ \delta^{\frac{1}{n} + 1} - x^{\frac{1}{n} + 1} \right] dx dy$$

$$\dot{V} = \frac{w}{\frac{1}{n} + 2} \left( \frac{\rho_L g}{k} \right)^{\frac{1}{n}} \delta^{\frac{1}{n} + 2} \quad [47]$$

De l'équation 47, on peut déduire l'épaisseur du film qui ruisselle sur la paroi en régime laminaire et pour un liquide Rhéo-fluidifiant ou Rhéo-épaississant, selon la valeur de n:

$$\delta = \left( \frac{\left( \frac{1}{n} + 2 \right) k^{\frac{1}{n}} \dot{V}}{(\rho_L g)^{\frac{1}{n}} w} \right)^{\frac{n}{1+2n}} = \left( \frac{\left( \frac{1}{n} + 2 \right) k^{\frac{1}{n}} \Gamma}{(\rho_L)^{\frac{n+1}{n}} (g)^{\frac{1}{n}}} \right)^{\frac{n}{1+2n}} \quad [48]$$

Si le liquide est Newtonien,  $n=1$  et  $k = \eta$ , et l'équation générale 48 redevient l'équation 43 précédente.

Rappelons que ce calcul de l'épaisseur de film  $\delta$  n'a de sens qu'en régime laminaire [Park et al. 2004].

#### **1-5-2-1-2-Corrélations pour estimer h en régime laminaire et laminaire avec vagues (wavy) en ébullition non nucléée**

Selon Miranda et al. 2005, le régime laminaire et laminaire avec vagues en ébullition non nucléée aura lieu quand le nombre de Reynolds en film  $Re_f < 1600$  ou  $Re_f < Re_{fc}$ , (Chun et al. 1971; Alhussini et al. 1998); où  $Re_{fc}$  est le nombre de Reynolds en film critique de passage entre régime laminaire et turbulent, définie de 2 façons comme suit (Chun et Seban, 1971) :

$$Re_{fc} \approx 5800 \cdot Pr^{-1.06} \quad [49]$$

$$Re_{fc} \approx 0.215 \cdot Ka^{\frac{1}{3}} \quad [50]$$

En régime laminaire (sans nucléation), la théorie de Nusselt [Nusselt, 1916, El Hai Assad et al. 2002, Panday, 2006] suppose que la chaleur est transférée par conduction depuis la paroi chaude jusqu'à l'interface liquide/vapeur où a lieu le changement de phase, avec les hypothèses suivantes (pour de l'eau pure saturée sur une paroi verticale isotherme):

- la chaleur est transmise de la paroi à travers le film ruisselant par conduction, sans mélange des couches fluides
- le profil de température dans le film ruisselant d'épaisseur  $\delta$  est linéaire,
- les termes d'inertie sont négligeables,
- la surface du film ruisselant est uniforme et la contrainte tangentielle à l'interface liquide/vapeur est nulle,
- le poids du film ruisselant est équilibré par les forces de frottement à la paroi.

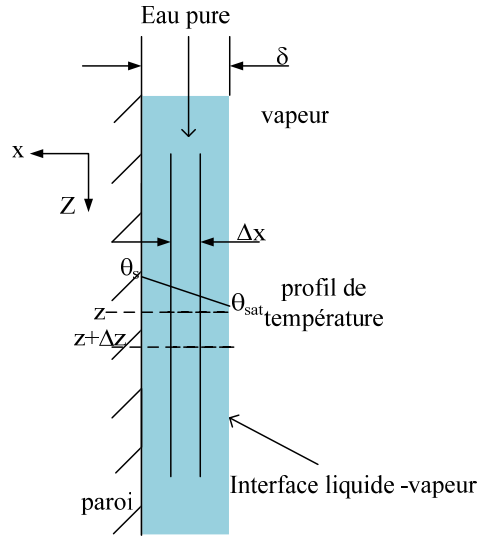


Figure 14 : schéma représentatif d'évaporation en film ruisselant laminaire (profil de la température  $\theta_s - \theta_{sat}$ ) selon Nusselt.

Dans ce cas, le bilan thermique à la paroi entre les sections  $z$  et  $z + dz$  (figure 14) est donné par l'équation suivante:

$$d\dot{Q} = \lambda_L \cdot dz \cdot \frac{\theta_s - \theta_{sat}}{\delta} = h_z \cdot dz \cdot (\theta_s - \theta_{sat}) \Rightarrow h_z = \frac{\lambda_L}{\delta}$$

où  $h_z$  est le coefficient de transfert de chaleur local, à la hauteur  $z$ .

Le coefficient de transfert de chaleur moyen  $h$  sur la hauteur  $L$  est obtenu par l'intégration d'équation précédente entre  $z = 0$  et  $z = L$  :

$$h = \frac{1}{L} \int_{z=0}^{z=L} h_z \cdot dz \Rightarrow h = \frac{1}{L} \int_{z=0}^{z=L} \frac{\lambda_L}{\delta} dz \Rightarrow h = \frac{\lambda_L}{\delta} \quad [51]$$

où  $\delta$  est l'épaisseur du film laminaire (calculable par l'équation 43).

D'après l'équation 51 et la définition du nombre de Nusselt (eq. 28), le nombre de Nusselt en conduction pure en régime laminaire, sans agitation de nucléation devient :

$$Nu = \frac{h_L \cdot \delta}{\lambda_L} = 1 \quad [52]$$

Généralement, dans un évaporateur à flot tombant et en régime d'écoulement laminaire ou laminaire avec vagues, et ébullition non nucléée, les équations sont présentées sous forme adimensionnelle ( $h^* = a Re^b Pr^c$ ), où  $h^*$  est le coefficient de transfert de chaleur côté liquide adimensionnel défini comme suit [Chun et al, 1971; Yih, 1986]:

$$h^* = h \left( \frac{\left( \frac{\eta_L^2}{\rho_L^2 g} \right)^{\frac{1}{3}}}{\lambda_L} \right) \quad [53]$$

Avec cette définition, on peut chercher à mettre l'équation 51 sous forme adimensionnelle, partant des équations 43 et 51 :

$$h = \frac{\lambda_L}{\delta} = \frac{\lambda_L}{\frac{3\eta_L \Gamma}{\rho_L^2 g}}^{\frac{1}{3}}$$

On peut réorganiser cette équation comme suit :

$$\frac{h}{\lambda_L} \left( \frac{\eta_L^2}{\rho_L^2 g} \right)^{\frac{1}{3}} = (3\Gamma)^{\frac{1}{3}}$$

En divisant les deux termes de l'équation par  $(\eta_L^{-1/3})$  :  $\frac{h}{\lambda_L} \left( \frac{\eta_L^2}{\rho_L^2 g} \right)^{\frac{1}{3}} = \left( \frac{3\Gamma}{\eta_L} \right)^{\frac{1}{3}}$ ,

en multipliant et divisant le terme de droite de l'équation par  $(4^{-1/3})$  :

$$\frac{h}{\lambda_L} \left( \frac{\eta_L^2}{\rho_L^2 g} \right)^{\frac{1}{3}} = \left( \frac{3}{4} \right)^{-\frac{1}{3}} \left( \frac{4\Gamma}{\eta_L} \right)^{\frac{1}{3}}$$

Il apparaît l'équation adimensionnelle suivante [Yih, 1986] :

$$\boxed{h^* = 1,1 \cdot Re_f^{-0,33}} \quad [54]$$

avec  $Re_f$  défini selon l'équation 23.

Cette équation est applicable pour l'estimation de  $h$  en régime laminaire et en ébullition non nucléée, établie pour l'eau pure [El Haj Assad et al. 2002].

Chun et al. 1971, ont amélioré l'équation 54 pour l'utiliser en régime laminaire avec vagues (wavy - laminar), et l'ont vérifiée pour un film d'eau pure ruisselante à l'extérieur d'un tube vertical chauffé, dans les domaines de la température de 30 à 100°C et d'un nombre de Reynolds de 320 à 3200 :

$$h^* = 0,606 \cdot Re_f^{0.22} \quad [55]$$

Prost et al. 2005, ont établi une équation pour estimer h pour les jus sucrés de  $X_{MS}$  (9% à 36 %),  $Re_f$  variant de 15 à 3000,  $Pr$  variant de 2,5 à 200 et  $\phi$  variant de 17 à 25 (kW. m<sup>-2</sup>), dans un évaporateur à flot tombant (12 tubes en acier inoxydable verticaux, de longueur 3 m et diamètre 25 mm):

$$h^* = 5,5 Re_f^{-0.38} \quad [56]$$

Pour comparer entre elles les trois équations (54, 55 et 56) valables en régime laminaire et laminaire avec vagues et toujours en ébullition non nucléée, nous les rétablissons sous une forme dimensionnelle dans le tableau 5.

|   | Corrélation dimensionnelle                                                               | Référence et nombre de l'équation adimensionnelle |
|---|------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------|
| 1 | $h = 1,48 \cdot \rho_L^{0.66} \cdot \lambda_L \cdot \eta_L^{-0.33} \cdot \Gamma^{-0.33}$ | Nusselt, 1916<br>Eq. n° 54                        |
| 2 | $h = 0,96 \cdot \rho_L^{0.66} \cdot \lambda_L \cdot \eta_L^{-0.44} \cdot \Gamma^{-0.22}$ | Chun et al, 1971<br>Eq. n° 55                     |
| 3 | $h = 6,93 \cdot \rho_L^{0.66} \cdot \lambda_L \cdot \eta_L^{-0.28} \cdot \Gamma^{-0.38}$ | Prost et al, 2005<br>Eq. n° 56                    |

Tableau 5 : équations dimensionnelles pour estimer h en ébullition non nucléée et régime d'écoulement laminaire et laminaire avec vagues.

Dans toutes les corrélations du tableau 5, h apparaît comme une fonction des mêmes paramètres thermo-physiques du liquide ( $\rho_L$ ,  $\lambda_L$ ), mais avec des exposants assez différents pour  $\eta_L$ . Nous pouvons remarquer que, pour toutes les formules, h diminue avec l'augmentation de  $\Gamma$ , ce qui correspond à une augmentation de l'épaisseur  $\delta$  (résistance de conduction). Par ailleurs h est indépendant de  $\phi$  ou  $\Delta\theta$ .

La dispersion entre les valeurs de  $h$  calculées, pour l'eau pure à 100°C et pour la même valeur de  $\Gamma = 0,11 \text{ kg. m}^{-1}.\text{s}^{-1}$ , par les trois équations (54, 55 et 56) est représentée en figure 14.

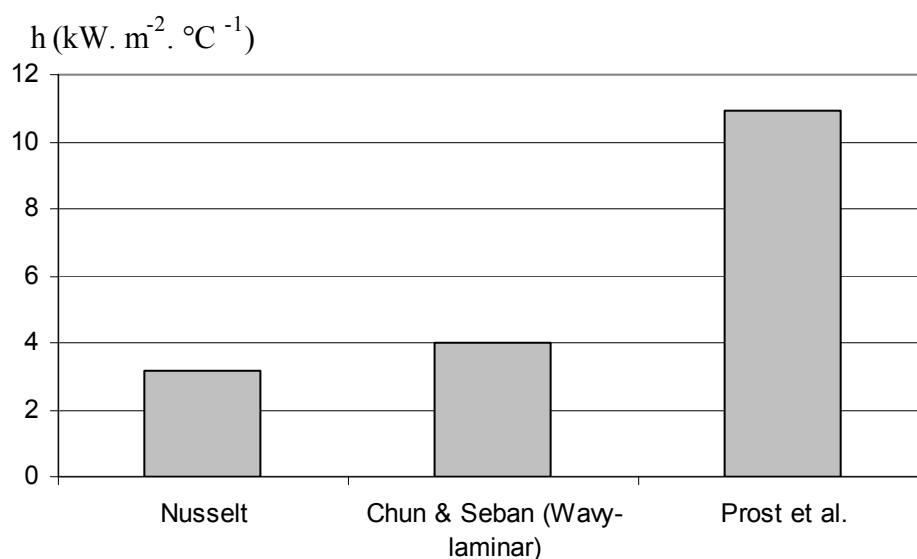


Figure 14 : comparaison entre trois équations utilisables pour estimer  $h$  en régime d'écoulement laminaire et laminaire avec vagues, pour l'eau pure à pression atmosphérique et  $Re_f < 1600$ , ( $\Gamma = 0,11 \text{ kg. s}^{-1}.\text{m}^{-1}$ ), en ébullition non nucléée.

Selon la figure 14, il apparaît que la valeur de  $h$  calculée varie dans une proportion de 1 à 3 entre les équations pour un même produit (eau pure). Rappelons que les équations 54 et 55 ont été vérifiées seulement pour l'eau pure, et celle de Prost et al. l'a été pour les jus sucrés, bien que son formalisme apparent n'interdise pas de l'utiliser pour l'eau, avec une viscosité plus faible. On peut donc penser que beaucoup d'effets liés au produit sont implicites dans les coefficients des équations du tableau 5 (tous les coefficients sont attachés à un produit), et que l'usage d'une forme « adimensionnelle » ne suffit pas à prédire  $h$  pour un nouveau produit, *contrairement aux apparences*. Malgré leur formalisme, l'usage de ces formules pour un autre produit que celui pour lequel elles ont été établies n'aurait donc pas de fiabilité. Nous confirmerons ce point de vue dans notre recherche.

Mais outre la dispersion des résultats démontrée ci-dessus entre formules, une autre incertitude pour l'emploi de ces formules reste de savoir si on est bien en régime d'ébullition non-nucléée (au lieu de nucléée), car alors  $h$  dépend de  $\Delta\theta$  ou  $\phi$ , et il faut changer de type d'équation.

**1-5-2-1-3-Les corrélations d'estimation h en régime turbulent et ébullition non nucléée**

Le régime turbulent en évaporateur à flot tombant commence quand  $Re_f > 1600$  [Krupiczka et al. 2002] ou  $Re_f > Re_{fc}$  [Alhussini et al. 1998], à cause soit d'une faible viscosité du liquide, soit d'une haute valeur de  $\Gamma$ .

En régime turbulent non nucléé, la résistance aux transferts peut s'interpréter comme une conduction dans une « sous-couche laminaire équivalente », d'épaisseur inférieure à  $\delta$ , qui n'est donc plus la dimension caractéristique. Par ailleurs, l'évaluation de  $\delta$  est plus difficile qu'en laminaire [Seban et al. 1976, Van Stralen et al. 1979 Chap. 27, Chun et al. 1995].

Pour ce régime, la littérature propose des équations sous forme adimensionnelle ( $h^* = a Re^b Pr^c$ ), avec la même définition de  $h^*$  présenté en équation 53.

Par exemple pour l'eau, l'équation de Chun et al. 1971 est proposée pour estimer h à différentes températures d'ébullitions (30 à 100 °C) et pour différentes valeurs de  $Re_f$  (3200 et 21000) en régime turbulent et non nucléé, dans un évaporateur à flot tombant :

$$h^* = 3,8 \cdot 10^{-3} \cdot Re_f^{0,4} \cdot Pr^{0,65} \quad [57]$$

Dans ce cas, h augmente avec le nombre de Reynolds en film, contrairement au cas laminaire précédent, mais reste indépendant de  $\phi$  ou  $\Delta\theta$  (conforme à l'hypothèse hypothèse d'ébullition non nucléée).

Nous avons comparé 5 corrélations utilisables pour estimer h, toutes relatives au régime turbulent et ébullition non nucléée, en les réorganisant sous forme dimensionnelle (tableau 6):

- ✓ McAdams 1940, pour l'eau pure ruisselant à l'intérieur d'un tube de cuivre vertical, pour  $Re_f$  de 1600 à 50 000,
- ✓ Wilk 1962, pour l'eau et un mélange de l'eau – éthylène-glycol ruisselant à l'extérieur du tube,
- ✓ Ahmed et Kahaparthi 1963, pour l'eau et solution aqueuse de glycérol sur une paroi verticale tube de cuivre, pour différents valeurs de Re de 2100 à 10250 et pour les différentes valeurs de Pr de 3,6 à 950,
- ✓ Herbert et Stren 1968, pour l'eau pure ruisselant à l'intérieur d'un tube de cuivre vertical, pour Re de 3000 à 20000,

- ✓ Chun et Seban 1973, pour l'eau à différentes températures d'ébullition (30 à 100) et pour différentes valeurs de  $Re_f$  (1600 et 21000).

|   | Corrélations dimensionnelle                                                                                           | Référence , nom et nombre d'équation adimensionnelle |
|---|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------|
| 1 | $h_L = 0,034 \cdot \rho_L^{0,67} \cdot \lambda_L^{0,33} \cdot C_{pL}^{0,33} \cdot \eta_L^{-0,66} \cdot \Gamma^{0,33}$ | McAdams et al. 1940,                                 |
| 2 | $h_L = 0,015 \cdot \rho_L^{0,66} \cdot \lambda_L^{0,66} \cdot C_{pL}^{0,34} \cdot \eta_L^{-0,72} \cdot \Gamma^{0,4}$  | Prost et al. (2006) ,Wilk                            |
| 3 | $h_L = 0,024 \cdot \rho_L^{0,66} \cdot \lambda_L^{0,6} \cdot C_{pL}^{0,4} \cdot \eta_L^{-0,61} \cdot \Gamma^{0,35}$   | Ahmed et Kaparathi, 1963                             |
| 4 | $h_L = 0,0044 \cdot \rho_L^{0,66} \cdot \lambda_L \cdot \eta_L^{-1,31} \cdot \Gamma^{0,65}$                           | Herbert et Stern, 1968                               |
| 5 | $h_L = 0,014 \cdot \rho_L^{0,66} \cdot \lambda_L^{0,35} \cdot C_{pL}^{0,65} \cdot \eta_L^{-0,41} \cdot \Gamma^{0,4}$  | Chun et Seban, 1971, Eq. n° 57                       |

Tableau 6 : équations dimensionnelles pour estimer  $h$  en ébullition non nucléée et régime d'écoulement turbulent, en film de liquide ruisselant.

Nous pouvons remarquer des équations du tableau 6, que  $h$  diminue avec l'augmentation de  $\eta_L$  pour l'ensemble des équations citées, et que  $h$  est toujours indépendant de  $\phi$  ou  $\Delta\theta$  (pour une ébullition non-nucléée) , mais à l'inverse de la situation laminaire, ici  $h$  augmente avec  $\Gamma$  . L'augmentation de  $h$  avec  $\Gamma$  s'explique comme pour l'équation de Dittus- Boelter : la « couche limite laminaire équivalente » est moins épaisse quand le nombre de  $Re_f$  augmente (pour un même  $\eta$ ), ce qui diminue la résistance au transfert, bien que  $\delta$  puisse augmenter avec  $\Gamma$  (voire figure 15).

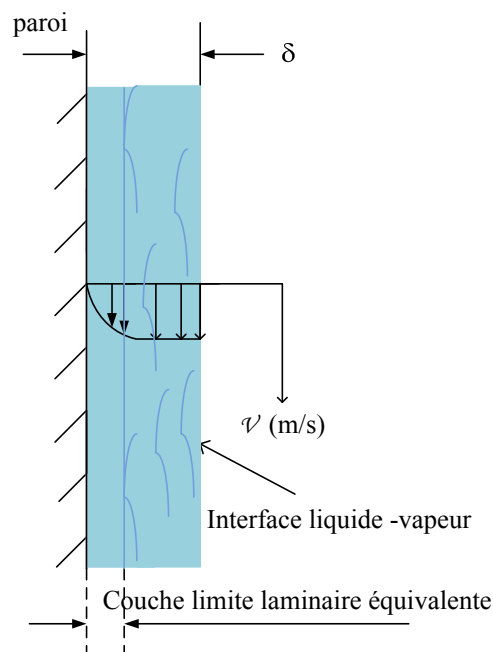


Figure 15 : schéma représentatif de l'écoulement en régime turbulent (profil de vitesse  $v$ ).

La dispersion des valeurs de  $h$  calculées à partir des 5 équations du tableau 6 est présentée en figure 16, pour l'eau pure.

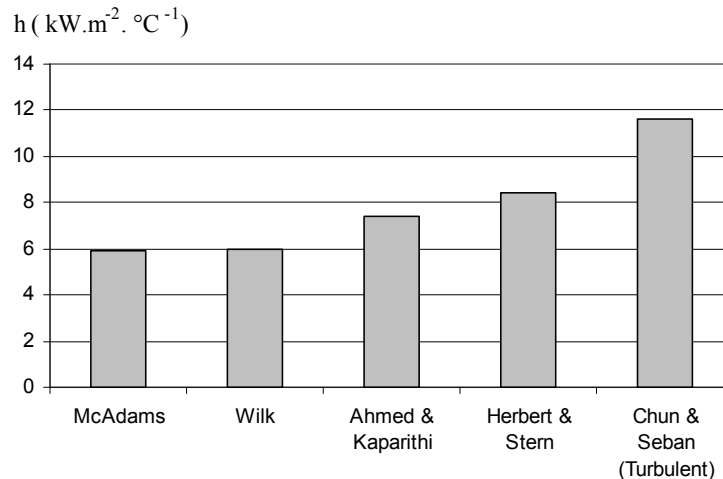


Figure 16 : comparaison entre cinq équations utilisables pour calculer  $h$  en régime turbulent pour l'eau pure à pression atmosphérique et à  $\Gamma = 0,47$  (kg.m<sup>-1</sup>.s<sup>-1</sup>),  $Re_f > 1600$  ou  $> Re_{fc}$ , en ébullition non nucléée et évaporateur à flot tombant.

D'après la figure 16, les valeurs de  $h$  varient dans un rapport de 1 à 2 entre les équations du tableau 6, ce qui semble meilleur qu'en ébullition en vase. Mais l'incertitude subsiste de savoir à quel  $\phi$  ou  $\Delta\theta$  le régime d'ébullition nucléé va commencer pour un produit donné, auquel cas il faudrait changer de type d'équation.

### 1-5-2-2 Corrélations pour l'estimation de $h$ dans un évaporateur à flot tombant en ébullition nucléée.

Le régime d'ébullition nucléée commence pour une différence de température ( $\Delta\theta$ ) ou un flux de chaleur suffisants, mais non prévisibles, même si on peut parfois la mettre en évidence visuellement. L'écart de température du début de nucléation dépend à la fois du liquide (ex : à  $\Delta\theta = 5$  °C pour l'eau pure, et 0,5 °C pour le lait (Bouman et al, 1993)), de la présence éventuelle d'impuretés, et de rugosité et nature de la paroi.

Dans ce régime, les bulles de vapeur se forment sur certains sites à la surface chauffée, ou proche de la surface de chauffe, puis grossissent et se détachent de la surface vers l'interface liquide – vapeur en traversant le film du liquide. L'agitation de nucléation (croissance et

détachement des bulles) s'ajoute à la convection due au débit ( $\Gamma$ ), pour établir le transfert de chaleur [Van Stralen et al.1979 chap.23]. Nous allons présenter certaines études en ébullition nucléée dans un évaporateur à flot tombant, applicables pour un liquide donné (eau pure, lait, etc.), mais la prévision de la transition de régime d'ébullition non-nucléée à nucléée reste problématique (Krupiczka et al. 2002).

Quand la nucléation a commencé, les auteurs décrivent un effet de  $\Delta\theta$  ou  $\phi$  sur  $h$ :

- ✓ Chen et al. (1997) et Jin et al (2002) ont trouvé que le coefficient de transfert de chaleur global diminue avec augmentation de  $\Delta\theta$  de 3 à 15 °C , pour les deux différents liquides étudiés, l'eau pure et les jus sucrés  $X_{MS} = 10\%$ .
- ✓ Bouman et al. (1993), Krupiczka et al. (2000), Wadekar et al. (2001) et Wedeker, 2002 ont trouvé que  $h$  augmente avec  $\Delta\theta$ , pour le lait, l'eau pure, une solution aqueuse de NaCl et des liquides à haute viscosité, et une solution aqueuse de NaCl, en ébullition, dans domaine de  $\Delta\theta$  de 0,4 à 20 °C selon le cas.
- ✓ Jebson & Chen (1997) ont trouvé que l'estimation de l'effet de  $\Delta\theta$  sur  $h$  est complexe.

Nous allons présenter plus en détail deux études appliquées au régime d'ébullition nucléée :

#### A. Corrélations de Krupiczka et al.

Krupiczka et al. 2000 ont étudié le cas de l'eau pure, de l'isopropanol et de l'éthanol en film ruisselant à l'intérieur de tube vertical à  $\phi > 30 \text{ kW} \cdot \text{m}^{-2}$ , correspondant au régime d'ébullition nucléée établi. Alors, le nombre de Nusselt défini en régime d'ébullition non nucléée ( $Nu_0$ ) doit être corrigé en utilisant le nombre « d'ébullition » ( $Bo$ ) et/ou le nombre de Kapitza ( $Ka$ ) (voir équations 25 et 29), donnant un nombre de Nusselt ( $Nu$ ) corrigé comme suit :

$$\frac{Nu}{Nu_0} = 1 + C B_o^{1,727} \quad [58]$$

$$\frac{Nu}{Nu_0} = 1 + C (B_o \cdot Ka^{\frac{1}{11}})^{1,6} \quad [59]$$

Si on considère que l'épaisseur moyenne du film en régime nucléé reste approximativement égale à celle du film en régime non nucléé, on peut écrire les équations 58 et 59 respectivement comme suit ( $h_0$ , pour ébullition non nucléée et  $h$ , pour ébullition nucléée) :

$$\frac{h}{h_0} = 1 + C B_O^{1.727}$$

$$\frac{h}{h_0} = 1 + C (B_O \cdot Ka^{\frac{1}{11}})^{1.6}$$

- pour  $B_O \leq 10^{-5}$ ,  $C = 0$  (eq. 58) ou  $B_O \cdot Ka^{1/11} \leq 10^{-5}$  (eq. 59),  $C = 0$  et  $Nu = Nu_0$ , où  $Nu_0$  est le nombre de Nusselt en régime d'ébullition non nucléé. Dans ce cas  $h = h_0$ , et on peut calculer  $h$  à partir des équations 55, 57 selon le régime d'écoulement constaté (laminaire ou turbulent).
- pour  $B_O > 10^{-5}$ ,  $C = 8,1 \cdot 10^6$  (eq. 58) ou  $B_O \cdot Ka^{1/11} > 10^{-5}$   $C = 7 \cdot 10^7$  (eq.59) pour les trois liquides étudiés. Alors,  $h$  augmente avec  $\phi$  ou  $\Delta\theta$  et les équations 55 et 57 ne sont plus utilisables dans ce cas. Le coefficient  $h_0$  au dénominateur correspond au transfert de chaleur en régime d'ébullition non nucléée, et où le deuxième terme de la somme (équations 58, 59) exprime l'apport de la nucléation au transfert de chaleur.

### **B. Corrélations de Bouman et al.**

Bouman et al. (1993) ont identifié expérimentalement deux équations différentes pour estimer  $h$  en ébullition nucléée dans un évaporateur à flot tombant (tube vertical), pour le lait écrémé et le lait entier :

$$\text{➤ pour lait écrémé,} \quad h = 0,77 \cdot \phi^{0,69} \cdot \eta^{-0,41} \quad R^2 = 0,83 \quad [60]$$

$$\text{➤ pour lait entier,} \quad h = 6,05 \cdot \phi^{0,47} \cdot \eta^{-0,44} \cdot \Gamma^{0,26} \quad R^2 = 0,83 \quad [61]$$

avec  $\phi$  en ( $W \cdot m^{-2}$ ),  $\eta$  en ( $Pa \cdot s$ ) et  $\Gamma$  ( $kg \cdot m^{-1} \cdot s^{-1}$ ).

Ils ont remarqué que la transition de l'ébullition non nucléée à l'ébullition nucléée est à  $\Delta\theta = 0,5$  °C pour le lait et à  $\Delta\theta = 5$  °C pour l'eau pure, ce dernier chiffre étant en accord avec la

courbe de Nukiyama pour l'eau en ébullition en vase (figure 9). Mais la transition de l'ébullition non nucléée à l'ébullition nucléée a lieu pour un flux de chaleur bien moins élevé pour le lait que pour l'eau. On peut penser relier cette différence sur les conditions de début de nucléation entre le lait et l'eau, à la différence de tension superficielle entre les deux liquides (Bouman et al. 1993), mais également à la présence de gouttelettes de matière grasse dans le lait formant des sites de nucléation, susceptibles d'initier la nucléation pour le lait entier dès un faible  $\Delta\theta \approx 0,5^\circ \text{C}$  (Jebson et al. 1996).

Selon les équations 60 et 61, les paramètres qui ont une forte influence sur  $h$  sont  $\eta_L$  et  $\phi$  ou  $\Delta\theta$  :

$$\text{➤ pour le lait écrémé } h = f(\phi)^{0.69} \text{ ou } h = f(\Delta\theta)^{2.3} \quad \text{et } h = f(\eta_L)^{-0.41}$$

$$\text{➤ pour le lait entier } h = f(\phi)^{0.47} \text{ ou } h = f(\Delta\theta)^{0.88} \quad \text{et } h = f(\eta_L)^{-0.44}$$

Les exposants de  $\phi$  ou  $\Delta\theta$  de l'équation pour le lait écrémé sont les mêmes que pour l'eau en ébullition en vase (courbe de Nukiyama et tableau 1), mais nettement moins forts pour le lait entier.

Dans la formule 61, le débit massique spécifique  $\Gamma$  (sur le périmètre de tube) a une faible influence, mais positive sur  $h$ , pouvant correspondre au régime turbulent.

Nous avons comparé la courbe de Nukiyama pour l'eau pure (ébullition en vase) avec les valeurs de  $h$  calculées par l'équation 60 pour le lait concentré  $X_{MS} = 5, 10, 20$  et  $30\%$  à  $65^\circ\text{C}$  et à différents flux de chaleur  $\phi = 5, 10, 20, 30 \text{ kW} \cdot \text{m}^{-2}$  (ébullition nucléée en évaporateur à flot tombant), la simulation étant présentée en figure 17. Toutes les propriétés thermo-physiques du lait sont tirées de l'étude de (Paramalingam et al. (2000)).

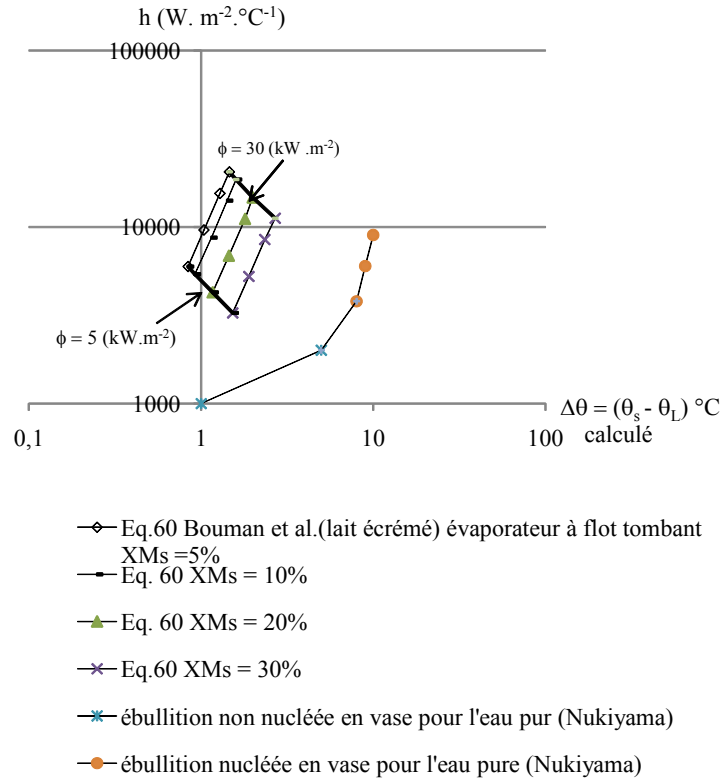


Figure 17 : Simulation - coefficients de transfert de chaleur calculés par l'équation 60 (évaporateur à flot tombant), pour différentes concentrations du lait [ $X_{MS} = 5, 10, 20, 30\%$ ] et différents flux de chaleur  $\phi = 5, 10, 20, 30$  (kW. m<sup>-2</sup>), à la température  $\theta_L = 65^\circ\text{C}$  ; comparaison avec la courbe de Nukiyama pour l'eau pure (ébullition en vase).

Selon Fig. 17 pour un lait de concentration de matière sèche  $X_{MS} = 5\%$ ,  $h$  augmente de 7 à 20 kW. m<sup>-2</sup>. °C<sup>-1</sup> quand le flux  $\phi$  augmente de 5 à 30 kW. m<sup>-2</sup>. Et à  $\phi = 30$  kW. m<sup>-2</sup>,  $h$  diminue de 20 à 12 kW. m<sup>-2</sup>. °C<sup>-1</sup> avec l'augmentation de concentration de matière sèche  $X_{MS}$  de 5 à 30%. Nous pouvons aussi remarquer que tous les coefficients  $h$  (flot tombant) pour le lait aux différentes concentrations de matière sèche sont nettement au dessus de la courbe de Nukiyama (ébullition en vase), bien que les viscosités du lait aux  $X_{MS} = 5, 10, 20, 30\%$  soient bien plus élevées que la viscosité de l'eau, à la même température. Une conclusion est ici que les équations pour estimer  $h$  en ébullition en vase ne conviennent pas d'une façon générale, pour prévoir  $h$  dans un évaporateur à flot tombant, même si l'agitation de nucléation pourrait sembler plus déterminante que celle venant de l'écoulement. La minceur du film ruisselant semble un élément important, de même que la nucléation dans le lait qui n'a pas lieu dans l'eau aux même  $\Delta\theta$ .

En figure 18, nous comparons, la prise en compte de la viscosité, entre les trois équations du tableau 6 (1, 4 et 5) pour estimer  $h$  en flot tombant, en régime turbulent et *ébullition non-nucléée*, et deux équations de Bouman et al. (60 et 61) utilisables pour estimer  $h$  en flot tombant et en *ébullition nucléée* pour le lait (ici à  $65^\circ\text{C}$ ), ici pour deux différents flux de chaleur (2 et  $30\text{ kW}\cdot\text{m}^{-2}$ ). Les simulations sont faites pour quatre différentes viscosités ( $5.5 \cdot 10^{-4}$ ,  $7 \cdot 10^{-4}$ ,  $1.25 \cdot 10^{-3}$ , et  $2.4 \cdot 10^{-3}\text{ Pa}\cdot\text{s}$ ), pouvant correspondre à des concentrations différents du lait.

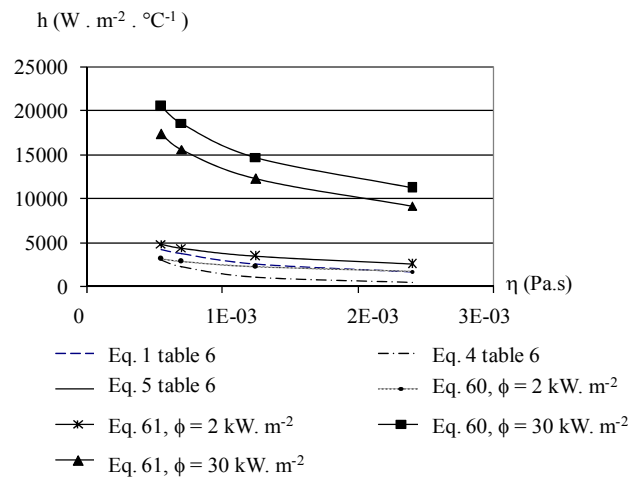


Figure 18 : Comparaison des valeurs de  $h$  calculées par cinq équations différentes, pour flot tombant, en fonction de la viscosité  $\eta$ , en utilisant les propriétés thermo-physiques du lait à  $65^\circ\text{C}$  avec  $\Gamma = 0,5\text{ kg}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$ , et deux différents flux de chaleur seulement pour les équations Bouman et al.  $\phi = 2$  et  $30\text{ (kW}\cdot\text{m}^{-2})$ .

A faible flux de chaleur  $\phi = 2\text{ kW}\cdot\text{m}^{-2}$ , les valeurs du coefficient de transfert de chaleur  $h$  calculées avec les équations Bouman et al. (60, 61 ébullition nucléée) sont très proches des valeurs calculées en régime d'ébullition non nucléée et régime turbulent (équations 1, 4 et 5 du tableau 6).

Mais à haut flux de chaleur  $\phi = 30\text{ kW}\cdot\text{m}^{-2}$ , les valeurs de  $h$  calculées avec les équations Bouman et al. (ébullition nucléée) sont 4 à 5 fois plus élevées que celles en ébullition non nucléée et régime turbulent (équations 1,4 et 5 du tableau 6). Le passage de l'ébullition non nucléée à l'ébullition nucléée, liée à l'augmentation de  $\phi$  ou de  $\Delta\theta$ , peut expliquer cette différence entre les deux situations. Nous explorerons l'effet de  $\phi$  dans notre travail expérimental.

Enfin, nous pouvons remarquer deux avantages de l'évaporateur à flot tombant : haute valeur de  $h$  à faible  $\Delta\theta$  comparé à l'ébullition en vase ce qui ne peut être affirmé en toute rigueur que pour un même produit.

## 1-6- Conclusion partielle

Les équations tirées de la littérature permettant d'évaluer  $h$  présentées dans ce chapitre, ont été établies pour certains liquides (eau, benzène, lait, etc.), mais leur validité pour d'autres liquides n'est pas prouvée, même si le formalisme adimensionnel pourrait le laisser croire. Il en est de même pour les facteurs explicites comme la viscosité, ainsi que d'autres descripteurs ( $\sigma_L$ ,  $\rho_L$ , etc.) présents dans les équations, qui ne suffisent pas à prédire  $h$  de façon fiable (grande dispersion entre formules).

Un autre problème qui n'est pas clairement résolu dans la littérature, concerne les conditions de la transition de l'ébullition non nucléée vers l'ébullition nucléée pour chaque liquide et/ou situation. L'écart de température de début de la nucléation est  $\Delta\theta = 5^\circ\text{C}$  pour l'eau pure en ébullition en vase, et semble le même dans un évaporateur à flot tombant, mais ne correspond pas au même flux de chaleur. Par contre cette transition peut être très différente pour d'autres liquides ( $0,5^\circ\text{C}$  pour le lait entier). D'où globalement, une faible valeur prédictive des formules, qui justifie notre démarche de caractérisation expérimentale, décrite ci-après.

Sur le bas de cette analyse bibliographique, nous allons maintenant décrire une démarche qui déplace l'effort expérimental, en mesurant directement  $h$  en fonction des variables des procédés  $h = f(X_{Ms}, \theta_L, \phi(\Delta\theta), \Gamma)$ , au lieu d'avoir à mesurer les propriétés physiques des produits ( $\rho_L$ ,  $\eta_L$ ,  $\sigma_L$ , etc.) à utiliser ensuite dans des formules peu sûres. Les études seront menées dans un pilote à flot tombant, en conditions maîtrisées, et permettant d'explorer les effets de chaque paramètres sur  $h$ , dont la transition du régime d'ébullition de non nucléée à nucléée. On va aussi proposer différents modèles pour représenter  $h$ , utilisables pour le calcul d'appareils en ingénierie. On comparera deux comportements rhéologiques courants dans les solutions alimentaires, Newtonien et non-Newtonien.

# Chapitre II

## Matériel et Méthode

## Introduction

- La première étape de mon travail a été de concevoir un évaporateur de paillasse de type flot tombant (pilote) permettant la mesure expérimentale du coefficient de transfert de chaleur  $h$  pour les fluides alimentaires en ébullition, dans des conditions connues reproductibles ( $\phi$ ,  $\Gamma$ ,  $X_{MS}$  et  $P$ ), en intégrant l'effet du régime d'écoulement constaté en fonction de la rhéologie du produit dans les conditions du procédé et du régime d'ébullition pour un produit donné, surtout sans avoir besoin de mesurer au préalable les propriétés thermo-physiques du produit. Les résultats devront être comparés ultérieurement aux résultats industriels.
- La deuxième étape est d'étudier comment représenter et modéliser la réponse de  $h$  par des corrélations propres à chaque produit alimentaire, en fonction des paramètres du procédé, et du seul descripteur  $X_{MS}$  concernant le produit. Ces fonctions empiriques dites « fonctions de réponse » (lois polynômes ou lois puissances) doivent être utilisables en calcul automatique d'appareil multiple effet, éventuellement domaine par domaine. On explorera aussi des voies pour simplifier le plan d'expérience par rapport à l'étude plus complète menée ici dans un but d'exploration.

### 2-1- Le pilote

Nous avons conçu et fait construire le pilote devant représenter un évaporateur de type flot tombant, permettant d'évaluer le coefficient de transfert de chaleur ( $h$ ) paroi/liquide en ébullition, en fonction des paramètres de procédés ( $X_{MS}$ ,  $\theta_L$ ,  $\phi$ ,  $\Gamma$ ), basé sur les caractéristiques suivantes :

- Le liquide ruisselle à l'extérieur de la surface cylindrique, en utilisant un distributeur formant un film d'épaisseur uniforme sur le périmètre du cylindre. On suppose que le rayon de courbure (concave en écoulement interne, convexe ici) a un effet négligeable sur l'épaisseur  $\delta$  du film liquide. L'épaisseur  $\delta$  du film s'établit selon la viscosité du liquide (ou viscosité équivalente si non-Newtonien) et le débit spécifique de liquide  $\Gamma$ , et éventuellement sous l'effet de l'agitation de nucléation.
- Les propriétés de la surface de chauffe sont fixes, soit une surface de test cylindrique de diamètre 30 mm, longueur 103 mm, en acier inoxydable 316 L, poli par usinage ( $R_s \approx 0,8 \mu m$ ). Ce type de surface en acier inox est courant dans les industries alimentaires, pour des raisons de nettoyage et pour sa résistance à la corrosion.

- La concentration en matière sèche  $X_{MS}$  reste quasi constante le long du tube de test, parce que le débit massique de vapeur émise est négligeable par rapport au débit massique de liquide circulant, pour tout le domaine d'expérience ( $\dot{m}_{ve} \ll \dot{m}_L$ ).
- La température du liquide ( $\theta_L$ ) reste constante le long du tube, si le liquide rentre bien à sa température d'ébullition, ce qu'on obtient par un préchauffage en amont, suivi d'une petite flash-ébullition juste avant la zone test. La concentration du liquide testé  $X_{MS}$  reste aussi constante pendant tout le temps de la manipulation, parce que la vapeur émise est condensée dans l'enceinte, et retourne au réservoir d'alimentation. On suppose que les propriétés physiques du produit n'évoluent pas sensiblement pendant l'essai (pas de coagulation, cristallisation, ...), ou alors on souhaite suivre cette évolution.
- Le tube de test est chauffé par l'électricité, en fonctionnant à puissance imposée  $\dot{Q}$ , donc à flux  $\phi$  imposé, et on attend le régime stationnaire. Nous pouvons supposer que l'épaisseur de film de liquide reste uniforme autour de tube de test pour l'écoulement laminaire et laminaire avec vague [Du et al.2002]. Aussi on suppose que les pertes de chaleur vers le haut et le bas de la surface de test, sont négligeables (présence d'un isolant thermique). Du fait du préchauffage amont créant un début d'ébullition, toute la chaleur apportée à la surface correspond bien à un transfert par ébullition, et non pas au réchauffage préalable du produit. On vérifiera aussi que la température du liquide  $\theta_L$  reste identique pendant l'essai, entre entrée et sortie de la zone test (moins de 0,5 °C d'écart). On vérifiera que cette température  $\theta_L$  est conforme à la température prévue à partir de la pression mesurée dans le pilote et de l'élévation ébulliométrique, quand elle est connue (pour les jus sucrés : équation [20] et abaque de Othmer et Silvis.). De cette façon, toute l'énergie fournie  $\dot{Q}$  pendant le transfert de chaleur est donc bien liée à des transferts avec changement d'état.
- Nous contrôlons la pression dans le pilote par le condenseur et la pompe à vide, avec une régulation active (électrovanne commandée, consigne  $\pm 15$  mbar). Nous pouvons de travailler théoriquement à très faible pression (jusqu'à 96 mbar - température d'ébullition d'eau pure  $\theta_{sat} = 45$  °C), mais des défauts d'étanchéité limiteront, dans le montage actuel, le vide à 250 mbar, soit  $\theta_{sat} = 65$ °C.

- Nous pouvons observer, grâce à l'enceinte principale du pilote en verre, le début visible de l'ébullition nucléée, et la qualité du mouillage de la surface de test, et/ou l'apparition de « taches sèches », selon la valeur de  $\Gamma$ .
- Le domaine accessible est pour le flux de chaleur, de 0 à  $85 \text{ kW} \cdot \text{m}^{-2}$ , et pour le débit de fluide, de 15 l/h à 200 l/h, c'est à dire  $\Gamma_L$  entre  $0,04 \text{ (l} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-1})$  et  $0,7 \text{ (l} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-1})$ .

Nous allons examiner quelques détails constructifs significatifs du pilote, qui sont - la base (téflon) – la surface de test (tube de test) – le distributeur de liquide (cône et cloche d'écoulement avec le vis tournant) - le condenseur et la pompe à vide- le préchauffage du liquide – la pompe de circulation.

**2-1-1- La base téflon:** C'est une pièce cylindrique en téflon (figure 19), permettant d'isoler thermiquement la zone de test, et percée pour le passage des fils électriques alimentant la cartouche chauffante, et les 4 sondes platine (Pt100) vers la paroi d'échange de chaleur (la surface de test). L'étanchéité entre la base et la surface de test est à obtenue par serrage, et mastic silicone à l'extérieur.

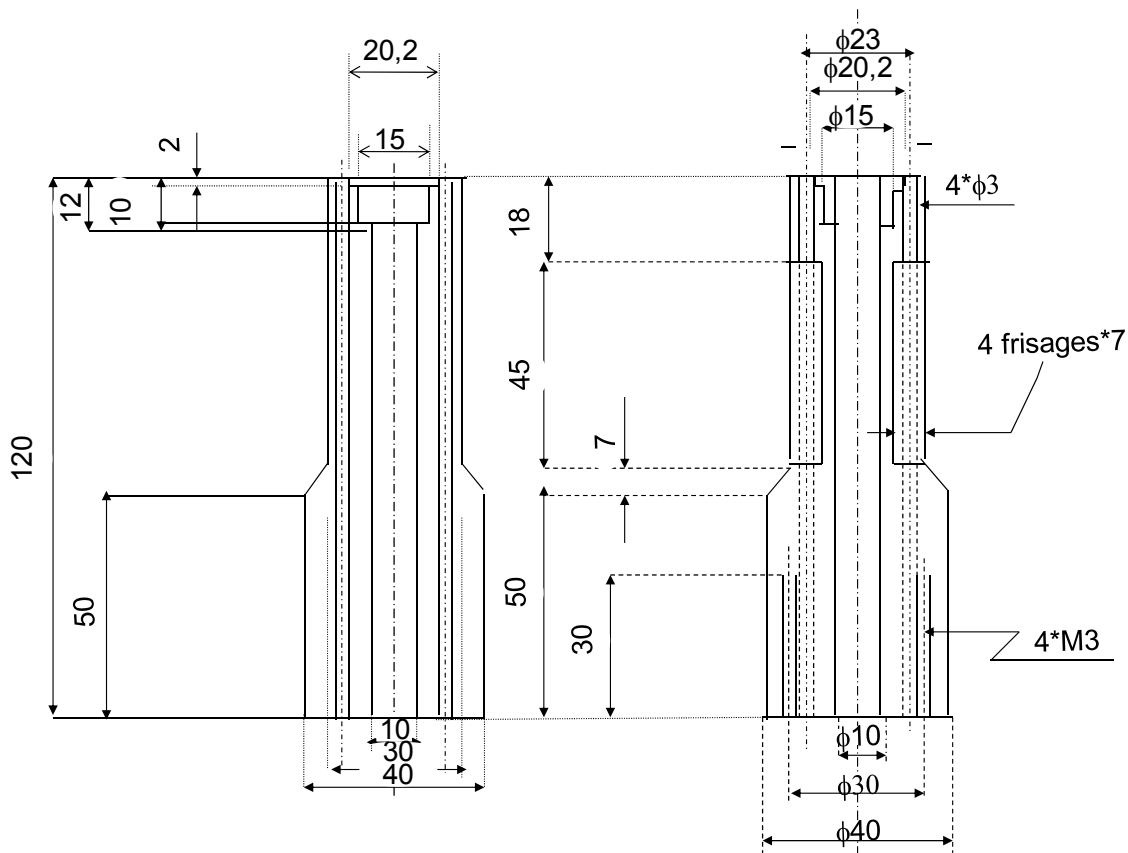


Figure 19 : élévation et vue latérale de la base téflon.

Une difficulté est celle des perçages « longs » pour le passage des 4 sondes Pt 100, de diamètre 1,5 mm, gainées d'acier inoxydable, sans nuire à l'étanchéité au vide.

### 2-1-2-La surface de test

C'est un tube cylindrique en acier inoxydable, de diamètre interne adapté à la cartouche chauffante de puissance maximale 800 W (fabricant VULCANIC), de longueur 100 mm, diamètre 16 mm (figure 20) La surface externe est usinée polie ( $R_s \approx 0,8 \mu\text{m}$ ), diamètre 30 mm, avec une épaisseur de 7 mm, supérieure à celle des tubes classiques. Mais ce n'est pas gênant si on travaille en régime stationnaire à flux imposé, et qu'on peut établir la température à l'interface paroi/liquide.

Les 4 sondes platine sont placées dans la demi-épaisseur de la paroi du tube : zone de mesure de diamètre 1,5 mm, longueur utile de mesure 25 mm (capteur de température S32941515 \*200\*25 \* 3000 V02978 fournisseur JD mesure). L'élément sensible est une sonde à résistance Pt 100 Ohms à 0 °C, classe A, montage quatre fils, précision  $\pm 0,03$  à 0°C et  $\pm 0,12$  à 100 °C. Elles sont positionnées à mi-hauteur, à 90° sur un grand cercle, au même rayon par rapport à l'axe de la pièce ( $r_m = 11,5 \text{ mm}$ ). Avec ces quatre mesures et la connaissance du flux de chaleur imposé  $\phi$ , on calculera plus loin la température de surface moyenne  $\theta_s$ , correspondant à chaque situation du plan d'expérience. Chaque mesure de température est représentative d'une petite surface d'échange (de l'ordre de 25 mm de hauteur, quelques mm en largeur), et on discutera plus loin de l'interprétation de l'hétérogénéité parfois constatée entre les 4 mesures, sur la périphérie de la surface de test. L'étanchéité entre la surface de test et la noix téflon supérieure et inférieure est faite par joint torique serré.

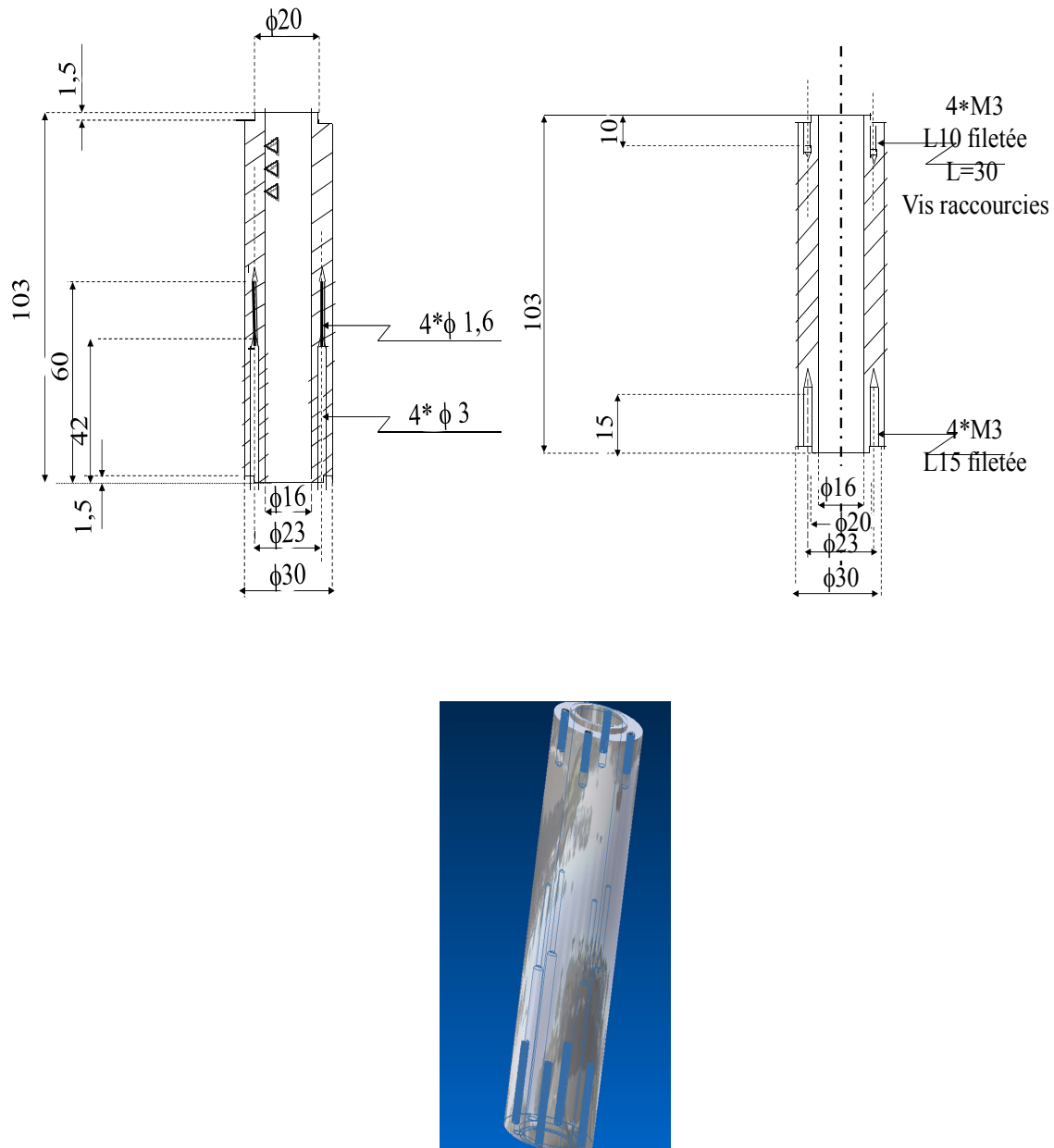


Figure 20: vue d'avant et vue latérale de la surface de test, et vue de la surface de test en 3D.

### 2-1-3- La « noix » téflon supérieure

Elle permet d'isoler thermiquement la surface de test en haut, et de la relier mécaniquement avec le distributeur et le cône d'écoulement supérieur (voir figure 21), qui doivent rester coaxiaux.

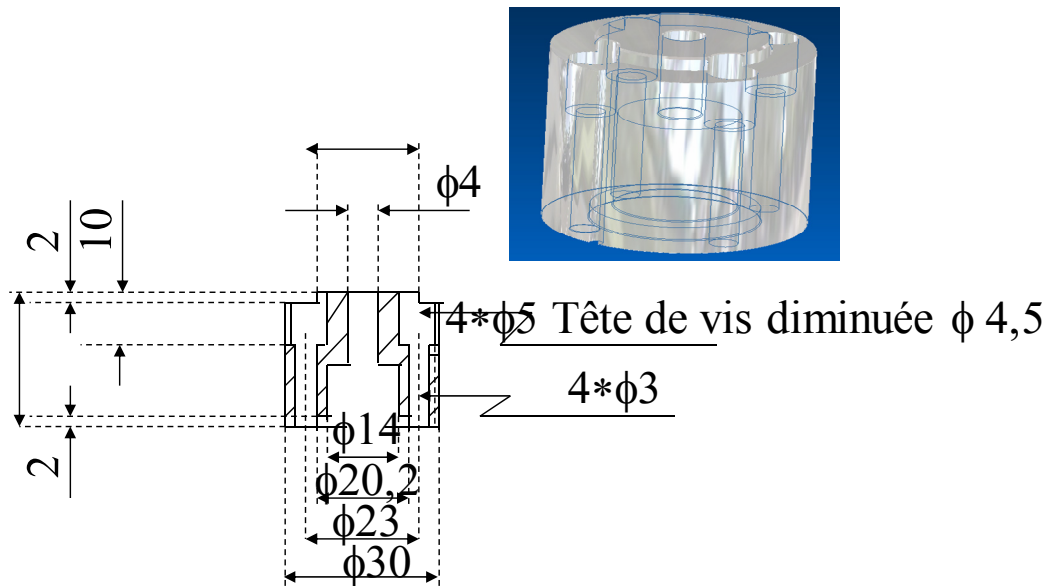
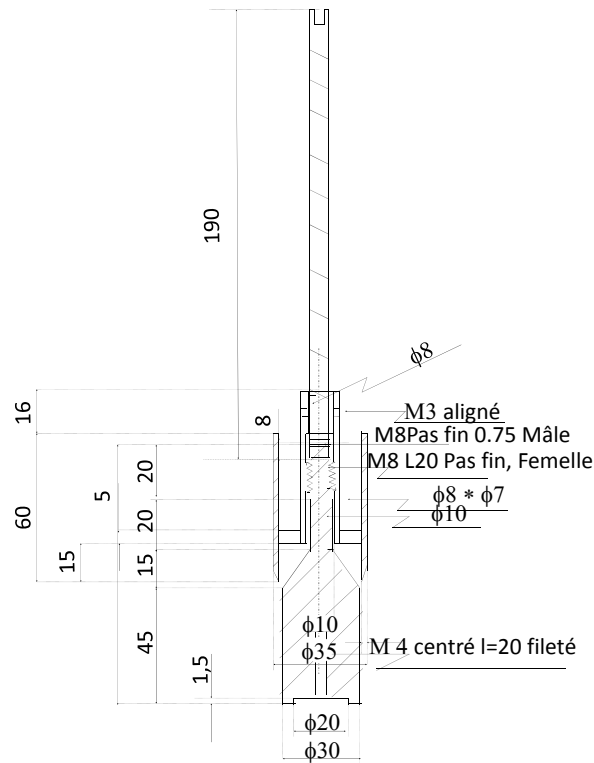


Figure 21 : vue latérale et en 3D de la noix téflon.

#### 2-1-4 Le distributeur : cône et « cloche » d'écoulement + vis de réglage

Le distributeur est composé de trois pièces qui doivent rester bien coaxiales : le cône, la « cloche » d'écoulement et la vis de réglage. Il s'agit de former un film de façon uniforme sur le périmètre supérieur de la surface de test, tout en réglant le jeu (j) pour s'adapter à chaque situation, sachant que le débit et la viscosité du liquide peuvent varier beaucoup entre les essais. Voir figure (22).



A



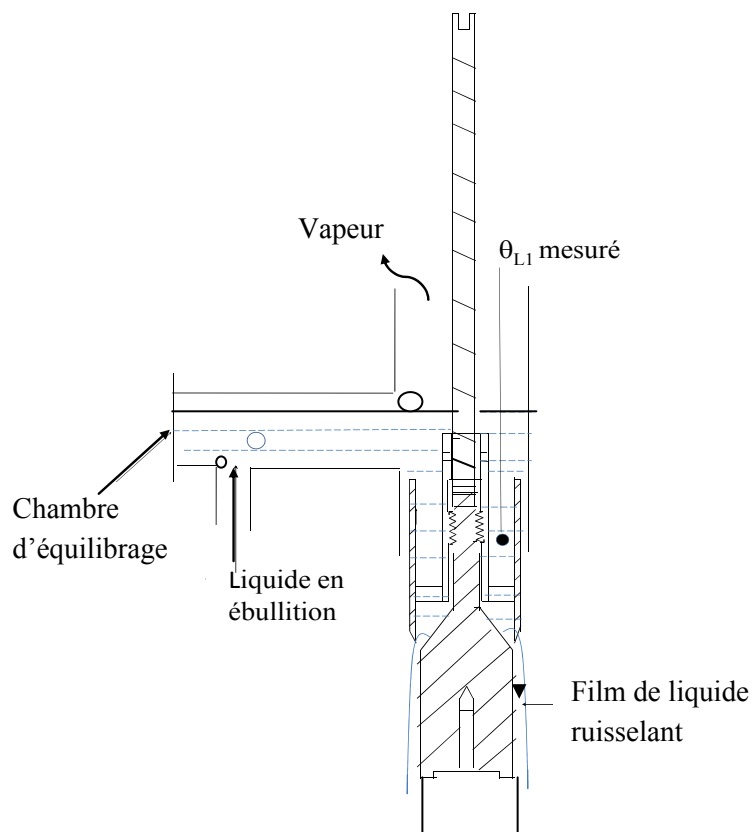
B

C

Figure 22 : coupe transversale du distributeur (A) et vue en 3-D de la cloche et du cône d'écoulement (B et C).

Le réglage du jeu (j) fixe un niveau du liquide au dessus de l'ouverture, niveau qui doit être suffisant pour bien répartir, mais sans déborder, en utilisant le vis de réglage à pas fin

(usinage atelier), et bien qu'on ne puisse pas voir le niveau du liquide dans le distributeur. On mesure la température du liquide ( $\theta_{L1}$ ) au niveau du réservoir du distributeur amont (voir figure 23).



La Figure 23, Coupe de l'assemblage des pièces décrites ci-dessus, avec la chambre d'équilibrage, où le liquide se met à sa température d'ébullition  $\theta_L$ .

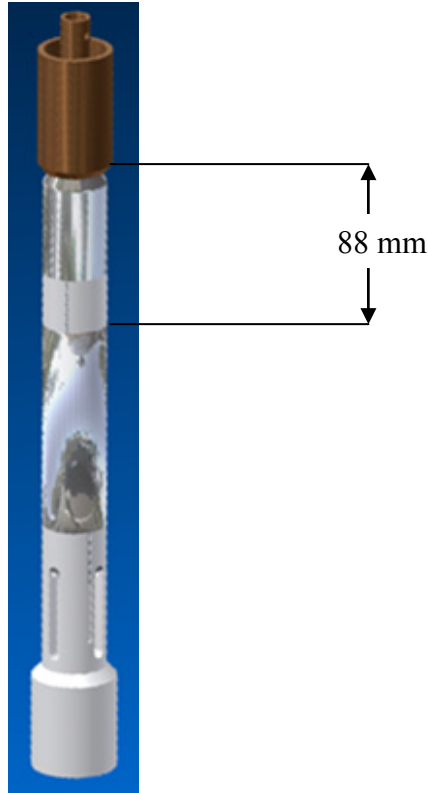


Figure 24 : Image de l'ensemble des pièces.

La distance entre la sortie du liquide du distributeur, et le haut de la surface de test est de 88 mm, ce qui pose la question de savoir si on a un régime d'écoulement établi au niveau de la zone test. Une évaluation de la longueur  $L_{hy}$  nécessaire pour que le profil de vitesse ne dépende plus de la distance parcourue, est donnée par (Perry et al, 1984), pour un film de liquide ruisselant en régime laminaire sur la surface, par l'équation suivante :

$$\frac{L_{hy}}{\delta} = 0,59 + 0,056 Re_f \quad [62]$$

Par exemple, pour  $Re_f = 1500$  correspondant au maximum du cas laminaire, on a  $L_{hy} \approx 85 \delta$ , montrant que la condition de régime d'écoulement établi est vérifiée si on a un film assez mince ( $\delta = 1$  mm). Ce critère ne s'applique pas au régime turbulent, et on supposera seulement que le régime d'écoulement est quasi-établi dans tout le domaine expérimental exploré. Il serait possible d'augmenter ultérieurement la longueur amont, si nécessaire.

### 2-1-5- Le condenseur

Il est constitué d'un tube inox 316 L (13,5 \* 1,6) en forme de U. Il sert à condenser la vapeur émise par le liquide étudié (zone de test) et par une partie du préchauffage, les condensats devant retourner au réservoir d'alimentation de la pompe. La paroi verre participe aussi à la condensation (buées).

Le condenseur est aussi un lieu d'accumulation des gaz incondensables présents dans la vapeur de l'enceinte verre, spécialement quand nous travaillons sous vide, avec des entrées d'air parasites. La pompe à vide doit aspirer ces gaz incondensables en dehors du pilote, prélevés au fond du tube entourant le condenseur, pour maintenir le bon fonctionnement du condenseur. Par ailleurs, la pompe à vide est protégée des arrivées de liquide par un second condenseur en verre, externe à l'enceinte, dont les condensats retournent également vers le réservoir d'alimentation. Ces deux condenseurs assurent que la concentration de matière sèche du liquide étudié reste quasi-constante pendant toute la manipulation.

**Avant-projet de calcul du condenseur** : Pour calculer la longueur totale de condenseur dont on a besoin dans notre pilote, il faut évaluer le coefficient de transfert de chaleur entre la vapeur condensée à l'extérieur du tube et l'eau froide qui circule à l'intérieur du tube de condenseur. On en déduira la surface A, et la longueur L (m) du condenseur selon les équations suivantes :

$$\dot{Q} = \dot{Q}_1 + \dot{Q}_2 = h_{g\text{cond}} \times A \times \Delta\theta_{ml}^-$$

avec : A la surface d'échange de chaleur =  $\pi D L$ , et L = longueur de tube :

$$L = \frac{\dot{Q}}{\pi D h_{g\text{cond}} \Delta\theta_{ml}^-} \quad [63]$$

$\dot{Q}_1$  = la puissance de chauffage dans le tube de test, soit 800 W maximale,

$\dot{Q}_2$  = la puissance de préchauffage du fluide, soit au maximum 1680 W (7 colliers chauffants de 240 W). Cette puissance est calculée pour permettre de compenser une différence entre la température du liquide en ébullition  $\theta_L$ , et celle du liquide passant par la pompe de 7 °C (hypothèse de calcul utile pour éviter la cavitation, voir plus loin), au débit de liquide de 200 kg/h avec le Cp de l'eau, soit:

$$\dot{Q}_2 = \dot{m} \times C_p \times \Delta\theta = \frac{200}{3600} \times 4180 \times 7 \approx 1625 \text{ W}$$

Une partie de  $\dot{Q}_2$  sert à réchauffer le liquide sans vaporisation, une autre partie non précisément connue sert à commencer l'ébullition, révélée par la présence de bulles de vapeur visibles en sortie du réchauffeur. Si 60% de  $\dot{Q}_2$  servait à créer l'ébullition et 40% à réchauffer le liquide, la puissance maximale à condenser serait :

$$\dot{Q} = 800 + 1008 = 1808 \text{ W maximum.}$$

On évalue  $\bar{\Delta\theta}_{mL}$  qui est la différence des températures moyenne logarithmique entre la vapeur et l'eau froide. Si nous supposons que la température d'entrée de l'eau froide  $\theta_{ef} \approx 20^\circ \text{C}$ , la sortie de l'eau tiède  $\theta_{et} \approx 25^\circ \text{C}$  et la température de vapeur condensant  $\theta_v \approx 70^\circ \text{C}$ ,  $\bar{\Delta\theta}_{mL}$  est définie comme suit :

$$\text{écart à l'entrée } \Delta\theta_a = \theta_v - \theta_{ef} = 50^\circ \text{C, à la sortie } \Delta\theta_b = \theta_v - \theta_{et} = 45^\circ \text{C}$$

$$\bar{\Delta\theta}_{mL} = \frac{\Delta\theta_a - \Delta\theta_b}{\ln \frac{\Delta\theta_a}{\Delta\theta_b}} = \frac{50 - 45}{\ln \frac{50}{45}} = 47,6^\circ \text{C}$$

Le coefficient de transfert de chaleur global  $h_{g \text{ cond}}$  entre vapeur à condenser / eau de refroidissement pour le condenseur, est évalué comme suit :

$$\frac{1}{h_{g \text{ cond}}} = \frac{1}{h_v} + \frac{e_m}{\lambda_m} + \frac{1}{h_L}$$

On suppose que  $h_v$  en moyenne  $\approx 7500 \text{ W.m}^{-2}.\text{C}^{-1}$  pour de la vapeur en condensation en présence d'incondensables (Bimbenet et al, 2002), et qu'on utilise un tube d'acier inoxydable  $\lambda_L = 15 \text{ W.m}^{-1}.\text{C}^{-1}$  d'épaisseur  $e_m = 1,6 \text{ mm}$ . Pour calculer  $h_L$ , nous avons supposé que l'eau froide circule dans le tube de diamètre interne 10,3 mm, au débit de  $400 \text{ l.h}^{-1}$ , ce qui correspond à la vitesse moyenne de  $\approx 1,33 \text{ m.s}^{-1}$ . Dans ce cas, la relation Dittus- Boelter permet de calculer le coefficient de transfert de chaleur paroi/eau :

$$\frac{h_L \times D}{\lambda} = 0,023 \times \text{Re}^{0,80} \times \text{Pr}^{\frac{1}{3}}$$

Les nombres de Reynolds et Prandtl valent ici, pour l'eau à  $20^\circ \text{C}$  :

$$\text{Re} = \frac{\rho v D}{\eta} = \frac{1000 \times 1,33 \times 0,0103}{1002 \times 10^{-6}} = 13670$$

$$Pr = \frac{C_p \eta}{\lambda} = \frac{4183 \times 1002 \times 10^{-6}}{0,603} = 6,95$$

soit :

$$h_L = \frac{0,023 \times Re^{0,8} \times Pr^{\frac{1}{3}} \times \lambda}{D} = \frac{0,023 \times (3390)^{0,8} \times (6,95)^{\frac{1}{3}} \times 0,603}{0,0103} \approx 5200 \text{ W. m}^{-2} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$$

D'où  $h_{g \text{ cond}} \approx 2300 \text{ W. m}^{-2} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$ , et la longueur du condenseur selon l'équation 63:

$$L = \frac{\dot{Q}}{\pi D h_{g \text{ cond}} \Delta \theta_{mL}} = \frac{1808}{3,14 \times 0,0103 \times 2300 \times 47,6} = 0,58 \text{ m}$$

Sur cette base, la longueur du tube de condenseur dans le pilote de 0,58 m doit assurer la condensation totale de la vapeur émise, et donc contrôler la pression dans le pilote. Par ailleurs,  $\dot{Q}$  à condenser sera généralement bien plus faible, et les pertes thermiques par la paroi de verre participent à la condensation de la vapeur émise, ainsi que le condenseur en verre placé en amont de la pompe à vide.

L'augmentation du débit d'eau froide permettrait aussi d'augmenter le flux thermique de condensation, de sorte que le condenseur réalisé devrait être suffisant. Les limites rencontrées viennent plutôt de ce que, lorsqu'on fonctionnera sous vide, l'étanchéité au vide se révélera insuffisante : les entrées d'air pénalisent les transferts côté condensation, et le débit nominal de la pompe à vide utilisée est trop faible pour ce débit parasite, de sorte que le niveau de vide maximum accessible a été de 311 mbar (pression absolue), soit  $\theta_s = 70^\circ\text{C}$ , dans la configuration actuelle. Mais le domaine exploré (de 311 à 1013 mbar) reste néanmoins représentatif de certains effets d'une évaporation multiple effets.

## 2-1-6 -Les pièces auxiliaires

- **Enceinte en verre** :  $D = 160\text{mm}$  et  $L = 400\text{mm}$ . Elle est utile pour visualiser l'ébullition commençante, et le mouillage uniforme de la surface de test. Cette conception permettrait ultérieurement d'essayer de mesurer l'épaisseur du film ruisselant. L'étanchéité au niveau des brides en verre, qui ne sont pas forcément bien planes ni bien parallèles, reste à améliorer.

### - Pompe volumétrique

Avant de décrire les caractéristiques de la pompe utilisée dans le pilote, nous allons expliquer en bref le concept de NPSH et de cavitation appliqué à notre cas.

A. Le NPSH: (net positive suction head) est la surpression minimale requise à l'entrée du corps de pompe, par rapport à  $P_{sat}$  du fluide au même endroit, pour assurer le fonctionnement correct de la pompe.

Le NPSH requis est une donnée caractéristique connue pour les pompes centrifuges, en fonction du débit, mais non précisée ici, pour une pompe volumétrique (le constructeur précise seulement « pompe en charge »).

Le NPSH disponible est défini dans notre situation, par :

$$NPSH_{\text{disponible}} = (P + \rho g z - \xi) - P_{\text{sat (entrée)}} \quad [64]$$

avec  $P$  : pression dans l'enceinte verre,  $P_{\text{sat (entrée)}}$ : la pression de vapeur saturante du liquide, à l'entrée de la pompe,  $z$  : hauteur entre la surface de liquide entre la surface du liquide et l'entrée de la pompe et  $\xi$  les pertes de charge.

Pour éviter la cavitation, il faut que le  $NPSH_{\text{disponible}} > NPSH_{\text{requis}}$ . Comme les pertes de charge sur la conduite d'aspiration  $\xi$  augmentent avec le débit, à partir d'un certain débit, la cavitation apparaît au point de pression minimum, qui est en général proche de l'entrée de la pompe. Des cavités remplies de vapeur se forment à l'intérieur de la pompe et se condensent plus loin en aval, dès que la pression remonte. Alors, le débit de la pompe n'est plus assuré pour une pompe volumétrique comme ici, et il y a des risques d'érosion mécanique des pièces.

Le problème est ici spécialement sensible ici, du fait qu'on est à l'équilibre liquide-vapeur dans le réservoir (enceinte de verre), en amont de la pompe (avec  $P = P_{\text{sat}}$ ), et que l'absence de cavitation souhaitée repose seulement sur les points suivants :

1. La pression hydrostatique ( $\rho g z$ ) de la colonne de liquide amont (80 cm), avec des pertes de charges faibles  $\xi$  (petit débit, et relativement grande section de passage), malgré un rétrécissement en amont de la pompe.
2. Les pertes thermiques qui refroidissent le produit de quelques degrés, et abaissent  $P_{\text{sat}}$  à l'entrée de la pompe (tube amont non isolé exprès).

3. L'utilisation d'une pompe volumétrique relativement lente ( $N < 200$  rpm), et à grande section de passage, ce qui correspond à un faible NPSH requis.

Il semble qu'il n'y ait jamais eu cavitation au cours de nos essais. Mais l'implantation ultérieure d'un débitmètre entre la pompe et le réchauffeur pourrait être utile dans l'avenir, pour contrôler que la pompe a bien un fonctionnement « volumétrique », notamment quand on voudra explorer les pressions plus basses, où le risque de cavitation est accru (moins de pertes thermiques, viscosité et pertes de charge  $\xi$  plus élevées).

- B. La pompe volumétrique est à vis excentrée, de type SEEPEX: BCSB1 – 6L/J0-A7-A7-FC-GD-X. Elle fixe le débit de fluide vers le tube de test, en passant par la colonne de préchauffage. Elle est reliée des deux cotés (aspiration et refoulement) par des tubes inox 316L (38 mm \* 1,25) munis de raccords tri-clamp complets (316L, S38 fabricant SODIME). Nous utilisons un sens de circulation inverse de l'habituel, pour empêcher (ou limiter) le risque d'entrée d'air (= gaz incondensables) du côté du joint tournant, quand le pilote fonctionne sous vide. La pompe est équipée d'un variateur de vitesse intégré, permettant de faire varier le débit massique circulant, fixant  $\Gamma$ . La correspondance entre l'indication du variateur et le débit volumique a été étalonnée, et vérifiée à plusieurs occasions.

#### **- Pompe à vide, et régulation du vide :**

- Pompe à vide : débit max 138 l/min, vide limite 75 mbar, fournisseur Fisher Bioblock Scientific, pompe à membrane utilisée pour évacuer les gaz incondensables entrant dans le pilote.
- Régulateur de vide : Nous utilisons un régulateur à vide CVC 2 (fournisseur Fisher- Bioblock Scientific) (précision  $\pm 1$  mbar) : l'écart de la mesure à la consigne commande une électrovanne de communication avec la pompe à vide, en fonctionnement cyclique (fluctuation résiduelle autour de la consigne  $\pm 15$  mbar). Mesure séparée de la pression absolue par manomètre visuel de 0 à 1300 mbar « bargraphe ».
- Réglage manuel du débit d'eau de refroidissement sur le condenseur interne. Nous utilisons un détendeur de pression pour stabiliser le débit de l'eau du condenseur, et un débitmètre type rota-mètre pour mesurer le débit d'eau froide.

- Condenseur en verre externe « à boules », avec une ampoule de verre pour recycler les condensats.

**-Centrale de mesure et acquisition des mesures :**

- Centrale de mesure Hydra - Fluke. Cet appareil comporte 20 canaux d'entrée, groupés dans un module d'entrée en face arrière, mais il apparaît qu'on ne peut acquérir que 10 mesures de température par Pt 100 montage 4 fils. La centrale de mesure est reliée à l'ordinateur pour acquérir et afficher les températures mesurées, via une interface «LABVIEW».
- Ampèremètre : l'intensité électrique I dans la cartouche chauffante est mesurée par un ampèremètre modèle PA 413, fournisseur (IVO INDUSTRIES). (alternatif/ continu), précision : erreur maxi en « ca »  $\pm 0,3\%$  de la lecture.
- Voltmètre : la tension électrique appliquée à la cartouche chauffante est mesurée par un voltmètre, modèle MDI 40, fournisseur (Carlo Gavazzi) précision  $\pm 0,1\%$  (à 25 °C).

Nous imposons la tension électrique (U et I mesurés) de façon manuelle avec un autotransformateur variant la tension de 0 à 270 V, et on attend le régime stationnaire thermique, visualisé sur l'écran de l'ordinateur.

**-Armoire électrique :** l'armoire électrique a été fabriquée à l'atelier de (ENSIA – GIA) par M. Saïd MOUSSA, composée de :

- coupure centrale de l'alimentation électrique.
- deux « arrêt/marche » avec indicateurs pour les pompes ( par de circulation de liquide, pompe à vide).
- sept interrupteurs électriques avec indicateurs de marche, pour les colliers chauffants,
- l'ampèremètre et le voltmètre.

Le pilote complet a été assemblé dans sa forme finale dans l'atelier (ENSIA-GIA) par M. Robert SAWKA.

**2-1-7- Description du pilote complet, et mise en œuvre:**

Notre pilote complet est décrit sur le schéma simplifié figure 25 :

- |                                                |                                    |                                |
|------------------------------------------------|------------------------------------|--------------------------------|
| 1- Tube de test                                | 2- Préchauffage                    | 3- Pompe volumétrique          |
| 4- Variateur de vitesse                        | 5- Pompe à vide                    | 6- Soupape de sécurité         |
| 7- Ampèremètre                                 | 8- Voltmètre                       | 9- Variateur de voltage        |
| 10- Condenseur                                 | 11- Distributeur pour le liquide   |                                |
| 12- Deux brides acier inoxydable (316)         | 13- Cylindre de verre (D = 120 mm) |                                |
| 14- manomètre                                  | 15- régulateur de vide             | 16- électrovanne de régulation |
| 17- Condenseur (pour protéger la pompe à vide) | 18- Vis d'ajustement.              |                                |

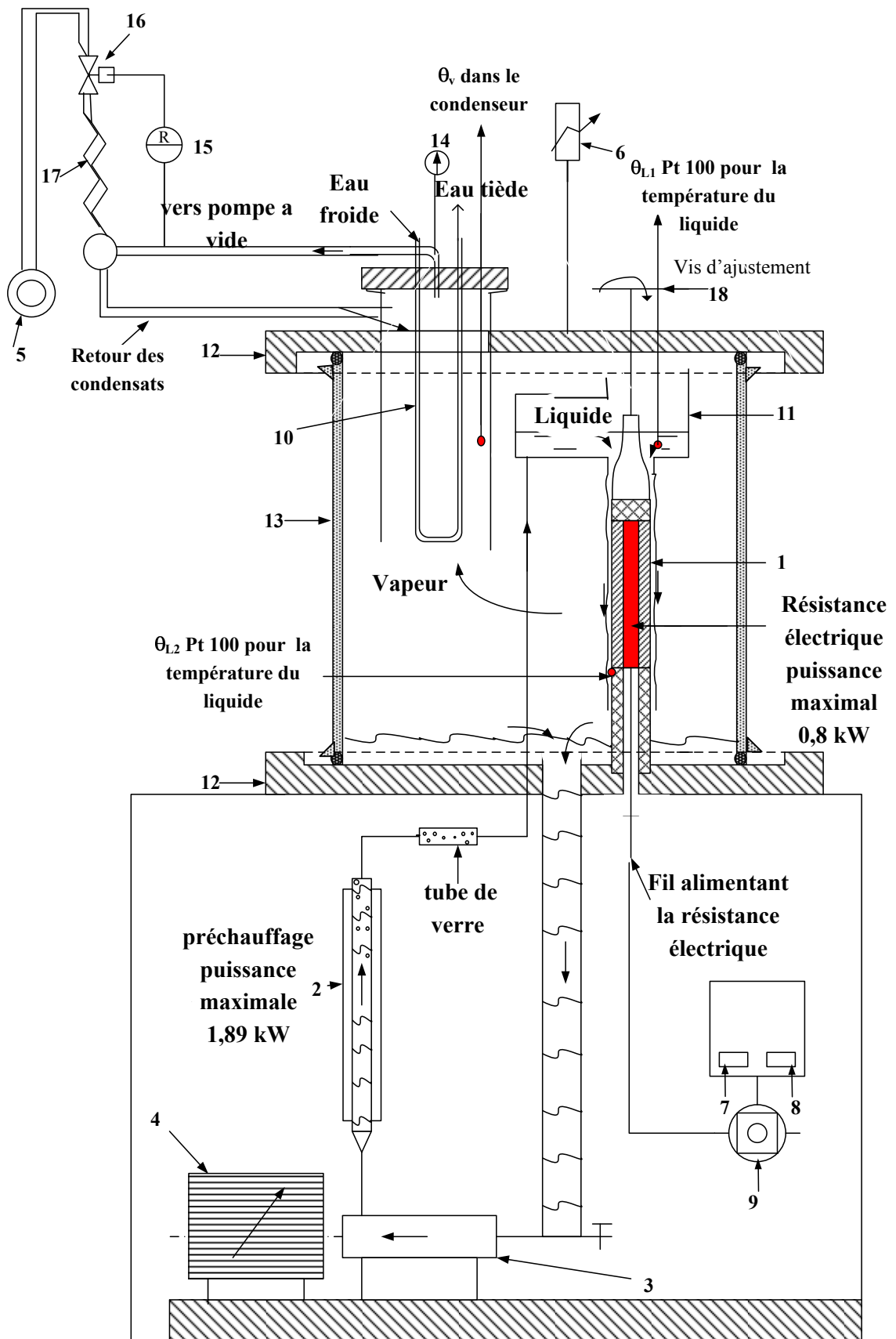


Figure 25 : Schéma simplifié du pilote complet.

En fonctionnement stationnaire, le liquide est pompé par la pompe volumétrique (3) vers le distributeur (11), où il arrive à sa température d'ébullition  $\theta_L$  du fait d'une petite « flash-ébullition ». Un réglage par vis d'ajustement (18) assure de distribuer le liquide sur tout le périmètre de la surface de tube (1). Le liquide ruissèle ensuite sur l'extérieur de la surface de test (1) sous forme de film mince. Le débit massique sur le périmètre du tube  $\Gamma$  est réglé par la pompe volumétrique, avec son variateur de vitesse intégré (4), pour étudier l'effet du débit liquide sur  $h$ , et sur la limite de mouillage de la surface. La température du liquide est mesurée par Pt(100) en deux points : «  $\theta_{L1}$  » en amont et «  $\theta_{L2}$  » en aval de la surface de test (voir figure 28). La différence de ces deux températures n'a jamais dépassé 0,6 °C (cas des forts flux), dans tout le domaine de variation des paramètres étudié ( $\phi$ ,  $X_{DM}$ ,  $\theta_L$  et  $\Gamma$ ), et l'écart est généralement inférieur à 0,2 °C à condition de s'assurer de l'ébullition dans le tube verre. La température de liquide  $\theta_L$  retenue est la moyenne entre ces deux mesures.

La vapeur émise est condensée par le condenseur (10) et retourne se mélanger au liquide testé, et mélangé dans la pompe, ce qui assure une concentration de matière sèche constante pendant la durée du test. Comme la surface de test est petite (94 cm<sup>2</sup>), il y a très peu de vapeur émise devant le débit circulant, et la concentration du liquide reste quasi-constante entre l'entrée et la sortie de la surface de test. La pression dans le pilote est contrôlée par le condenseur (10) et le régulateur de vide (15). Les gaz incondensables sont entraînés par la pompe à vide (5) aspirant en haut du condenseur.

La cartouche électrique reliée au variateur de voltage, impose le flux de chaleur moyen de 0 à 80 kW. m<sup>-2</sup>. On suppose l'émission de chaleur uniforme, mais le contact avec la surface de chauffe n'étant pas parfait, il est possible que des écarts de température apparaissent en surface de la cartouche chauffante. A flux imposé, ces écarts tendent à uniformiser le flux arrivant sur la paroi de test. Les 4 mesures de température de paroi  $\theta_m$  et les deux  $\theta_L$  sont transmises par la centrale de mesure (FLUKE – HYDRA) et enregistrées sur un PC, via le logiciel LABVIEW.

Pour chaque essai, on attend l'état stationnaire tel que les mesures restent constantes dans le temps : 2 températures de liquide et 4 de la paroi, l'intensité  $I$  et la tension  $U$  (flux de chaleur) et le débit massique sur périmètre du tube restant constants. L'expérience montre, qu'en l'absence d'encrassement, on pourra souvent enchaîner plusieurs flux  $\phi$  (kW. m<sup>-2</sup>) successifs, sans changer le produit circulant.

Le plan d'expérience est construit à partir des paramètres qu'on peut imposer et ceux qu'on va constater :

➤ Paramètres imposés (et mesurés) :

1. U de 0 à 270 V par variateur de voltage et mesure de U (V) et I (A), pour faire varier  $\phi$  (imposé) de 2 à 80 (kW. m<sup>-2</sup>).
2. Indice du variateur de vitesse de la pompe Seepex, de 5 à 100, le débit volumétrique correspondant étant étalonné, ce qui fait varier  $\Gamma$  (imposé) de 0,07 à 0,7 (kg. m<sup>-1</sup>. s<sup>-1</sup>).
3. P pression de l'enceinte, éventuellement sous vide, par le régulateur de vide, le condenseur et la pompe à vide (de 1013 mbar à 311 mbar) et mesure séparée de la pression par un manomètre.
4. X<sub>MS</sub> du liquide étudié, en kg matière sèche/kg solution, par préparation des solutions. On vérifie la stabilité de la concentration en matière sèche des solutions de saccharose avant et après la manipulation, en mesurant « le Brix » par un refractomètre.

➤ Paramètres constatés et mesurés :

1. L'état stationnaire : stabilité des températures de liquide et de la surface de chauffe, en fonction du temps. On n'a pas constaté dans notre cas, d'encrassement progressif des surfaces, avec les produits étudiés.
2. Mesure de  $\theta_m$  (1 à 4) d'où calculer  $\theta_s$ .
3. Mesure  $\theta_L$  (1 et 2) d'où  $\theta_L$ .

Le mode de calcul de h pour chaque essai, à partir du flux de chaleur imposé et de  $\Delta\theta$  calculé, est décrit ci-après.

## 2-2 -Estimation et mode du calcul de h (W. m<sup>-2</sup>. °C<sup>-1</sup>)

Comme nous l'avons vu, les mesures concernent 4 températures à l'intérieur de la paroi  $\theta_m$  au même rayon ( $r_m$ ), 2 températures de produit  $\theta_L$ , et le flux moyen  $\phi$  (kW. m<sup>-2</sup>). Pour calculer h, nous devons maintenant estimer la température de surface  $\theta_s$  à partir des informations

précédentes, connaissant la géométrie du cylindre creux de rayons intérieur ( $r_i$ ), rayon extérieur ( $r_s$ ) selon le figure 26.

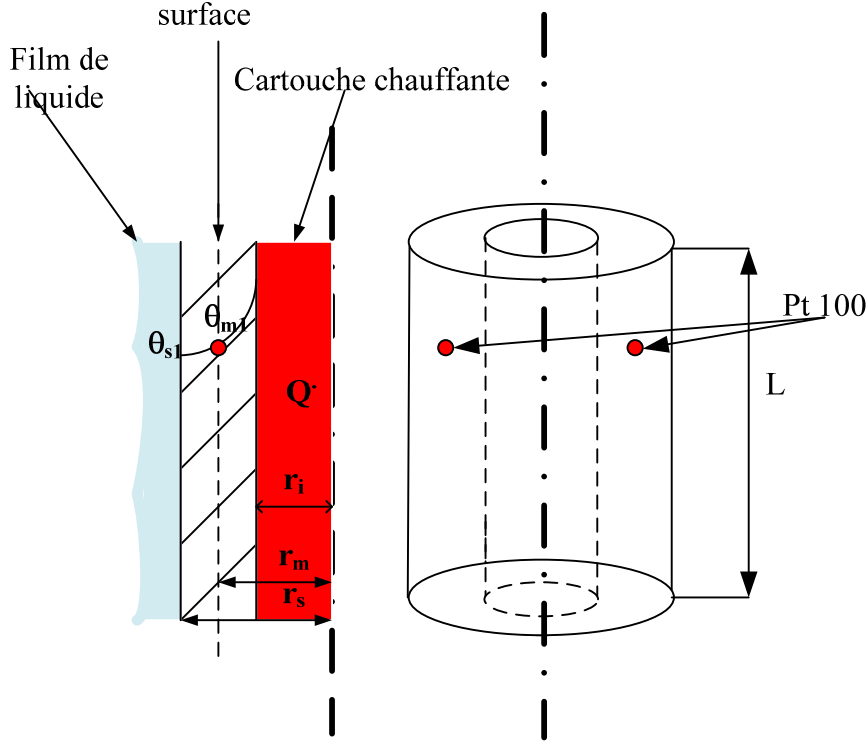


Figure 26 : paroi cylindrique creuse, à surfaces latérales isothermes (schéma simplifié de tube de test).

On part de l'équation générale des transferts de chaleur par conduction en régime permanent, dans un milieu homogène et isotrope, et en coordonnées cylindriques (SACADURA, 2000):

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \cdot \frac{\partial \theta}{\partial r} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial^2 \theta}{\partial \omega^2} + \frac{\partial^2 \theta}{\partial z^2} = 0 \quad [65]$$

Si les transferts de chaleur sont seulement radiaux, et uniformes sur le cercle et sur la hauteur :

$$\frac{\partial^2 \theta}{\partial \omega} = 0$$

$$\frac{\partial^2 \theta}{\partial z^2} = 0$$

Il reste 
$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \cdot \frac{\partial \theta}{\partial r} \right) = \frac{\partial^2 \theta}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial \theta}{\partial r} = 0 \quad [66]$$

La solution d'équation 66 s'obtient par deux intégrations :

$$\frac{\partial \theta}{\partial r} = \frac{C}{r} \quad [67]$$

$$\theta(r) = \int \frac{C}{r} dr = C \ln r + B \quad [68]$$

Les constantes d'intégration B et C sont déterminées par les conditions aux limites sur  $r_m$  et  $r_s$ , en appelant  $\theta(r_m) = \theta_m$ , et  $\theta(r_s) = \theta_s$  et en notant  $\theta_{m1}$  pour la sonde 1 (de 1 à 4) :

$$\theta_{m1} = C \ln r_m + B \quad [69]$$

$$\theta_{s1} = C \ln r_s + B \quad [70]$$

Les équations 68, 69 et 70 permettent de décrire le profil de température dans la paroi,  $\theta(r)$  en régime permanent, passant par les deux points caractéristiques:

$$\theta(r) = \theta_{m1} + \frac{\theta_{m1} - \theta_{s1}}{\ln\left(\frac{r_m}{r_s}\right)} \ln\left(\frac{r}{r_m}\right) \quad [71]$$

Pour déterminer  $\theta_{s1}$  à partir de  $\theta_{m1}$ , on utilise la connaissance du flux de chaleur ( $\phi$ ) transmis par conduction, selon la première loi de Fourier :

$$\phi(r) = -\lambda \frac{d\theta}{dr} \quad [72]$$

Des équations 71 et 72, on tire ici :

$$\phi(r) = \lambda \cdot \frac{\theta_{m1} - \theta_{s1}}{\ln\left(\frac{r_s}{r_m}\right)} \cdot \frac{1}{r} \quad [73]$$

Avec les valeurs suivantes connues : conductivité thermique de l'acier inoxydable  $\lambda = 15 \text{ W.m}^{-1} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$ , rayon  $r_m = 0,0115 \text{ m}$ , rayon extérieur  $r_s = 0,015 \text{ m}$  et  $i =$  de 1 à 4, l'équation (73) devient:

$$\theta_{si} = \theta_{mi} - (2,66 \cdot 10^{-4} \cdot \phi) = \theta_{mi} - (0,027 \cdot \dot{Q}_1) \quad [74]$$

en notant  $\phi$  ( $\text{W} \cdot \text{m}^{-2}$ ) le flux de chaleur sortant de la paroi:  $\phi = \frac{\dot{Q}_1}{2 \pi r_s L}$

La température de la surface ( $\theta_s$ ) utilisée pour calculer  $h$  est la moyenne entre les 4 températures ( $\theta_{s1}$ ,  $\theta_{s2}$ ,  $\theta_{s3}$  et  $\theta_{s4}$ ), calculées à partir des 4 températures mesurées ( $\theta_{m1}$ ,  $\theta_{m2}$ ,  $\theta_{m3}$  et  $\theta_{m4}$ ) selon l'équation [74], avec l'hypothèse d'un même flux issu de  $\dot{Q}_1$ .

La température de liquide ( $\theta_L$ ) est la moyenne entre les 2 températures mesurées en amont et en aval du tube de test.

Soit, partant de l'équation générale du transfert :  $\dot{Q}_1 = U \cdot I = h \cdot A \cdot (\theta_s - \theta_L)$

$$h = \frac{U \cdot I}{2 \pi \cdot r_s \cdot L \cdot (\theta_s - \theta_L)} = \frac{U \cdot I}{0,0097 \cdot (\theta_s - \theta_L)} \quad [75]$$

avec  $L$  = longueur de tube = 103 mm.

## 2-3- Les produits étudiés

Pour nos travaux expérimentaux, nous avons utilisé deux solutions modèles de liquide alimentaires, en plus de l'eau pure comme référence.

### A. Modèle Newtonien : solution de saccharose:

Nous avons utilisé le sucre cristallisé commercial, en préparant des solutions à quatre concentrations de matière sèche  $X_{MS}$  (10%, 30%, 50% et 70%), sachant que la teneur en eau initiale est négligeable ( $\approx 0,03\%$ ).

$X_{MS}$  10% : 3150 g eau pure + 350 g de sucre en poudre,

$X_{MS}$  30% : 2450 g eau pure + 1050 g de sucre en poudre,

$X_{MS}$  50% : 1750 g eau pure + 1750 g de sucre en poudre,

$X_{MS}$  70% : 1050 g eau pure + 2450 g de sucre en poudre.

## **B. Modèle non-Newtonien : solution de CarboxyMéthylCellulose (CMC), rhéofluidifiante**

Nous avons utilisé la Carboxyméthylcellulose de sodium purifiée à 99,5 % minimum. Son nom commercial est AQUALANO®/ BLANSO® CMC 9M65XF Cellulose Gum (poudre fine). Numéro CAS 9004-32-4

Fournisseur : Hercules S.A. (zone industrielle « le Clos Pré », 27460 Alizay, France - Tel. : 02 32989200, Fax : 02 32989249).

Les solutions de CMC ont déjà été utilisées comme liquides à haute viscosité par [Ahmed et al. 1999, Junhong et al. 1995].

Nous avons préparé des solutions de CMC à trois différentes concentrations de matière sèche  $X_{MS}$  (0,5%, 1%, 2%).

$X_{MS}$  0,5 % : 3482,5 g eau pure + 17,5 g CMC,

$X_{MS}$  1% : 3465 g eau pure + 35 g CMC,

$X_{MS}$  2% : 3430 g eau pure + 70 g CMC.

Pour une bonne dispersion à 20°C, nous avons utilisé un agitateur magnétique au fond, et un mélangeur avec pale défloculeuse à dents pour produits visqueux (fournisseur Bioblock).

## **2-4 Caractérisation des produits**

On a mesuré la viscosité des solutions et leur tension superficielle, avec les appareils suivants, situés au laboratoire de Biophysique des matériaux alimentaires Agroparistech-centre de MASSY.

### **2-4-1 Mesure de la viscosité équivalente:**

Le Rheomètre Physica MCR 301 (Anton Paar) est de type à 2 cylindres coaxiaux : cylindre 1 (couette) de référence CC 27/S, et cylindre 2 de référence CC- 027/ T 200/S, dans un bain thermostat. Nous avons mesuré la viscosité des solutions de CMC à taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  entre 0,05 et 500 s<sup>-1</sup> et des températures de 20, 30, 50, et 70 °C.

### **2-4-2 Mesure de la tension superficielle : Tracker VF, INTCONCEPT dit transi-mètre à goutte :**

La tension interfaciale entre deux fluides est calculée à partir de l'analyse de la forme du profil d'une goutte d'un premier fluide (ici l'air), formée à l'extrémité d'un capillaire

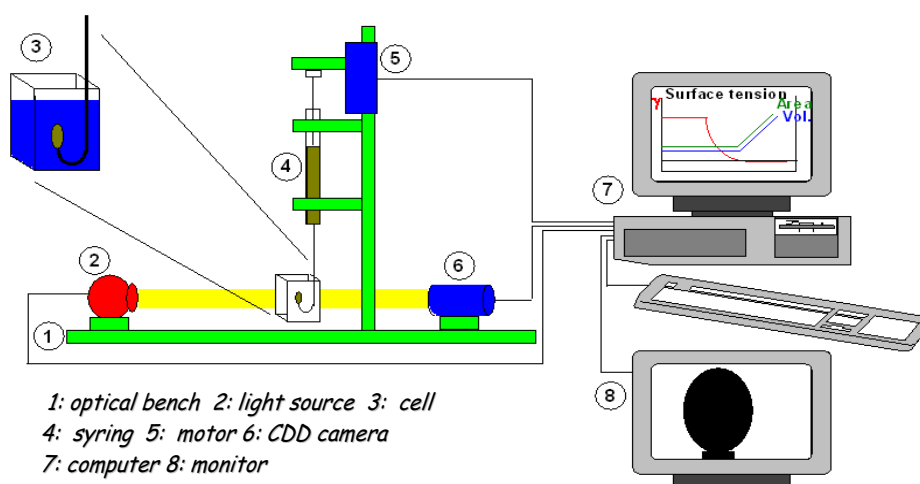
relié à une seringue, qui plonge dans une cuvette contenant le second fluide (ici la solution à caractériser). Le calcul fait appel aux deux équations suivantes :

- L'équation de Laplace - Young :  $\Delta P = \sigma \left( \frac{1}{R} + \frac{1}{R'} \right)$
- L'équation d'équilibre de la goutte sous l'action de la pesanteur et de la tension interfaciale :  $2 \pi x \sigma \sin \omega = V \cdot g \cdot (\rho_{f1} - \rho_{f2}) + \pi x^2 P$

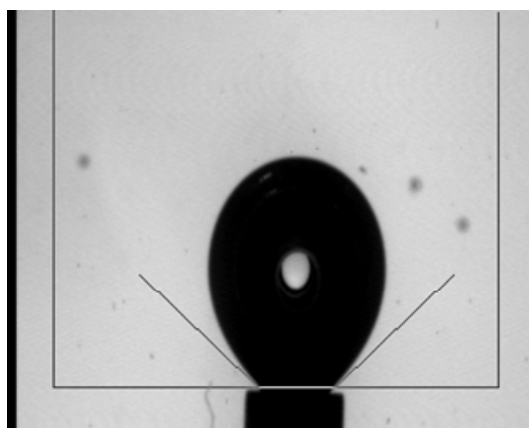
où  $P$  est la pression due à la courbure,  
 $\sigma$  est la tension interfaciale recherchée,  
 $R$  et  $R'$  sont les rayons de courbures principaux de la surface,  
 $\omega$  est l'angle de contact entre la normale et l'axe de révolution,  
 $V$  le volume du fluide,  
 $\rho_{f1}$  et  $\rho_{f2}$  sont les masses volumiques respectives des deux fluides,  
 $g$  la gravité  
 $x$  rayon caractéristique (m)

Dans notre cas, la bulle d'air de un volume  $V$  en  $\mu\text{L}$  piloté automatiquement, en configuration montante dans la cuvette de 7 ml contenant la solution de saccharose ou une solution de CMC à une température de 20 et 70 °C (fig. 27).

La bulle d'air est éclairée par une source lumineuse uniforme, de type sphère intégrante, et l'image de son profil est projetée par un objectif télécentrique sur une caméra CCD ( $512 \times 512$  pixels), où elle est numérisée et traitée par un logiciel pour déterminer la tension superficielle  $\sigma$  (liquide-air) et l'angle de contact  $\omega$ . Le traitement se fait plusieurs fois par seconde, car les valeurs peuvent évoluer dans le temps, par déplacement des composants [Benjamin et al, 1996, Mezdour et al, 2007].



A



B

Figure 27 : A - Photo de l'appareil (Tracker) et B - image d'une bulle d'air injectée en montant dans une solution de CMC 0,5% à 20°C (volume d'air injecté 7  $\mu\text{L}$ ). Le résultat est  $\sigma = 65,6 \text{ mN} \cdot \text{m}^{-1}$ .

## 2-5 - Optimisation du plan d'expérience

L'optimisation du plan d'expérience concerne l'établissement des corrélations  $h = f(\phi, \Gamma_L, \theta_L, X_{MS}, \dots)$ . Elle vise à réduire le nombre d'essais pour obtenir une corrélation fiable, pour l'application industrielle. Par exemple, notre domaine d'expérience pour les solutions de saccharose tel que présenté sur le tableau 7 qui suit, représente 640 mesures dans un plan d'expérience complet (soit  $5 \times 8 \times 4 \times 4 = 640$ ), sans parler des répétitions éventuelles.

| Variables                                            |           | Domaine d'étude             |
|------------------------------------------------------|-----------|-----------------------------|
| $\Gamma_L$ , (L. m <sup>-1</sup> . s <sup>-1</sup> ) | 5 niveaux | 0,21- 0,29- 0,42- 0,56- 0,7 |
| $\phi$ (kW. m <sup>-2</sup> )                        | 8 niveaux | 2- 4- 5- 10- 20- 40- 60- 80 |
| $\theta_L$ à $P_{sat}$ (mbar)                        | 4 niveaux | 311- 474- 701- 1013         |
| $X_{MS}$ [(kg MS/ kg solution) × 100]                | 4 niveaux | 10- 30- 50- 70              |

Tableau 7 : les domaines de variables expérimentales pour les solutions de saccharose (plan

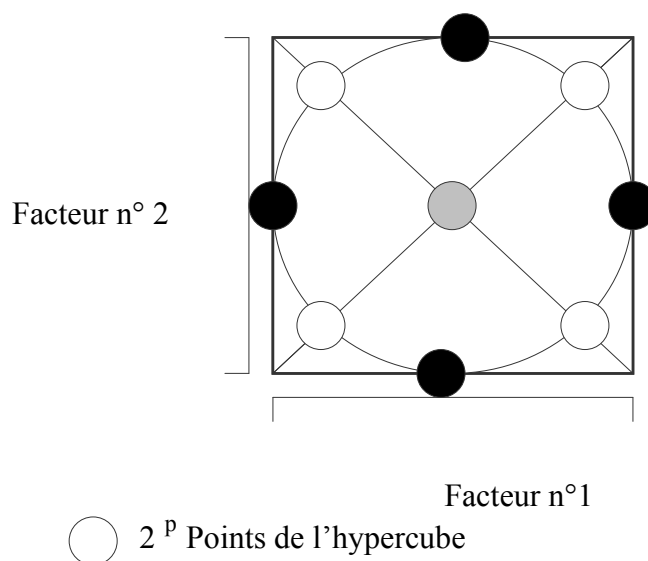
complet) où  $\Gamma_L = \frac{\dot{V}}{\pi D}$  en l. s<sup>-1</sup>. m<sup>-1</sup>.

Pour explorer comment réduire le nombre d'expériences de 640 essais à 20 ou 30 essais environ, nous avons exploré deux méthodes différentes:

- le plan central composite, conduisant à des « équations polynomiales » linéaires par rapport aux coefficients ;
- le plan D-optimal, permettant des « équations puissances ».

### 2-5-1 Le plan central composite

Pour un modèle polynomial de type  $h = a + b \phi + c X_{MS} + d \Gamma_L + e \theta_L$ , le plan central pour quatre facteurs, où chaque facteur est utilisé à des niveaux différents, est établi selon la règle suivante, représentée la figure 28 pour deux facteurs seulement [Marc DANZART, 2005] :



●  $2^p$  Points du parallétope

○ 2 points centraux

Figure 28 : définition d'un plan central composite à 2 facteurs.

On appelle :

- min : la valeur minimum,

- V2: la première valeur intermédiaire,  $V2 = \text{moy.} - \frac{\sqrt{p}}{p} (\text{moy} - \text{min})$

- moy. : la valeur moyenne,

-V4: la première valeur intermédiaire,  $V4 = \text{moy.} + \frac{\sqrt{p}}{p} (\text{moy} - \text{min})$

- Max : la valeur maximum,

Le nombre d'essais est alors  $n = 2^p + 2p + 2$  avec  $p$  est le nombre des facteurs. Le plan central composite pour les solutions de saccharose à  $p = 4$  facteurs ( $n = 26$  essais) tel que présenté sur le tableau 8:

|    | $X_{MS}$ (%) | $\phi$ (kW.m <sup>-2</sup> ) | $\theta_L$ (° C) | $\Gamma_L$ (L. m <sup>-1</sup> .s <sup>-1</sup> ) |  |
|----|--------------|------------------------------|------------------|---------------------------------------------------|--|
| 1  | 40           | 41                           | 85               | 0,455                                             |  |
| 2  | 40           | 41                           | 85               | 0,455                                             |  |
| 3  | 40           | 41                           | 85               | 0,21                                              |  |
| 4  | 40           | 41                           | 85               | 0,7                                               |  |
| 5  | 40           | 41                           | 70               | 0,455                                             |  |
| 6  | 40           | 41                           | 100              | 0,455                                             |  |
| 7  | 40           | 2                            | 85               | 0,455                                             |  |
| 8  | 40           | 80                           | 85               | 0,455                                             |  |
| 9  | 10           | 41                           | 85               | 0,455                                             |  |
| 10 | 70           | 41                           | 85               | 0,455                                             |  |
| 11 | 25           | 21,5                         | 77,5             | 0,3325                                            |  |
| 12 | 25           | 21,5                         | 77,5             | 0,5775                                            |  |
| 13 | 25           | 21,5                         | 92,5             | 0,3325                                            |  |
| 14 | 25           | 21,5                         | 92,5             | 0,5775                                            |  |
| 15 | 25           | 60,5                         | 77,5             | 0,3325                                            |  |
| 16 | 25           | 60,5                         | 77,5             | 0,5775                                            |  |
| 17 | 25           | 60,5                         | 92,5             | 0,3325                                            |  |
| 18 | 25           | 60,5                         | 92,5             | 0,5775                                            |  |
| 19 | 55           | 21,5                         | 77,5             | 0,3325                                            |  |
| 20 | 55           | 21,5                         | 77,5             | 0,5775                                            |  |
| 21 | 55           | 21,5                         | 92,5             | 0,3325                                            |  |
| 22 | 55           | 21,5                         | 92,5             | 0,5775                                            |  |
| 23 | 55           | 60,5                         | 77,5             | 0,3325                                            |  |
| 24 | 55           | 60,5                         | 77,5             | 0,5775                                            |  |
| 25 | 55           | 60,5                         | 92,5             | 0,3325                                            |  |
| 26 | 55           | 60,5                         | 92,5             | 0,5775                                            |  |

Tableau 8 : plan central composite théorique, pour les solutions de saccharose.

### 2-5-2 Les plans D – optimaux

Lorsque le modèle à ajuster est non linéaire, ou bien lorsque le domaine d'étude n'est pas symétrique, les plans précédents ne fournissent pas de solutions acceptables.

Pour un model de type « fonction puissance »,  $h = a \phi^b X_{MS}^c \Gamma_L^d \theta_L^e$

nous avons utilisé l'algorithme FEDOROV [Ben Salma et al. 1998] programmé avec le logiciel Scilab ou Matlab pour construire le plan D – optimal, et réduire le nombre d'essais à 25 essais. Le programme est présenté en annexe 1 (programmé par B. Heyd).

Dans ce cas, la propriété recherchée est appelée « D-optimalité », telle que le déterminant de la matrice  $X'X$  soit maximale, où  $X$  est la matrice des variables (pour 25 essais).

Le plan D-optimal pour les solutions de saccharose à 4 facteurs est présenté en tableau 9.

|    | $X_{MS}(\%)$ | $\phi \text{ (kW} \cdot \text{m}^{-2})$ | $\theta_L (^\circ\text{C})$ | $\Gamma_L \text{ (L} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$ |
|----|--------------|-----------------------------------------|-----------------------------|----------------------------------------------------------------|
| 1  | 10,00        | 2,00                                    | 70,00                       | 0,21                                                           |
| 2  | 10,00        | 60,50                                   | 70,00                       | 0,21                                                           |
| 3  | 10,00        | 80,00                                   | 70,00                       | 0,21                                                           |
| 4  | 55,00        | 2,00                                    | 70,00                       | 0,21                                                           |
| 5  | 70,00        | 2,00                                    | 70,00                       | 0,21                                                           |
| 6  | 70,00        | 80,00                                   | 70,00                       | 0,21                                                           |
| 7  | 10,00        | 2,00                                    | 100,00                      | 0,21                                                           |
| 8  | 10,00        | 60,50                                   | 100,00                      | 0,21                                                           |
| 9  | 10,00        | 80,00                                   | 100,00                      | 0,21                                                           |
| 10 | 70,00        | 2,00                                    | 100,00                      | 0,21                                                           |
| 11 | 70,00        | 60,50                                   | 100,00                      | 0,21                                                           |
| 12 | 70,00        | 80,00                                   | 100,00                      | 0,21                                                           |
| 13 | 10,00        | 2,00                                    | 100,00                      | 0,5775                                                         |
| 14 | 10,00        | 2,00                                    | 70,00                       | 0,70                                                           |
| 15 | 10,00        | 60,50                                   | 70,00                       | 0,70                                                           |
| 16 | 10,00        | 80,00                                   | 70,00                       | 0,70                                                           |
| 17 | 55,00        | 2,00                                    | 70,00                       | 0,70                                                           |
| 18 | 70,00        | 2,00                                    | 70,00                       | 0,70                                                           |
| 19 | 70,00        | 60,50                                   | 70,00                       | 0,70                                                           |
| 20 | 70,00        | 80,00                                   | 70,00                       | 0,70                                                           |
| 21 | 10,00        | 2,00                                    | 100,00                      | 0,70                                                           |
| 22 | 10,00        | 80,00                                   | 100,00                      | 0,70                                                           |
| 23 | 70,00        | 2,00                                    | 100,00                      | 0,70                                                           |
| 24 | 70,00        | 60,50                                   | 100,00                      | 0,70                                                           |
| 25 | 70,00        | 80,00                                   | 100,00                      | 0,70                                                           |

Tableau 9 : plan D- optimal selon Fedorov, pour la fonction proposée, et pour le domaine expérimental.

Le programme présenté en annexe (1) sélectionne au sein de 625 essais, les 25 essais constituant le plan d'essai D-optimal (Det. (X'X) maximum), à l'aide de l'algorithme de Fedorov [Ben Salma et al. 1998].

## 2-6-Étalonnage des sondes Pt100 et du débit de la pompe volumétrique.

Avant de commencer de faire les manipulations, nous avons étalonné tous les sondes Pt 100 utilisées pour mesurer les températures, et nous avons mesuré le débit de la pompe volumétrique en fonction de l'indice du variateur de vitesse, de 0 à 100.

### 2-6-1- Etalonnage des Pt 100

- Détermination du zéro : pour étalonner les sondes Pt100 à 0 °C, on remplit de glace pilée (mélange glace/eau) bouteille de « thermos ». On plonge les sondes Pt 100 (gainées d'acier inoxydable) avec une sonde d'étalonnage dans ce mélange. Au moment où la sonde d'étalonnage reste stationnaire, on note toutes les mesures des sondes Pt 100 à étalonner. Les résultats présentés dans la figure 30 A ci-dessous.
- Détermination du point 100 °C : pour étalonner les sondes Pt100 à 100 °C, nous avons utilisé l'appareil représenté dans la figure 29 [Ganot, 1876].

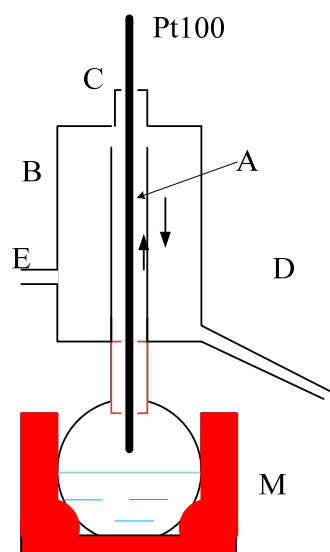


Figure 29 : appareil d'étalonnage à 100°C

L'appareil est composé d'une tubulure centrale A, fixée sur un ballon de verre M où l'eau bout, et une seconde tubulure B, concentrique avec la première, et l'entourant en entier, fermée à ses deux extrémités, munie de trois piquages C, D, E :

- C est un bouchon au centre duquel passe la sonde Pt 100 à tester;
- D sert à évacuer la vapeur émise, et/ou les condensats de la vapeur après qu'elle a circulé autour de sonde Pt100,
- E sert pour mesurer la pression de la vapeur dans l'appareil par un manomètre, et faire les corrections nécessaires.

Quand l'eau bout, la vapeur produite dans le vase M s'élève dans le tube A et se rend entre les deux enveloppes vers la sortie D, d'où elle se dégage dans l'atmosphère. L'air initial est évacué, et les parois autour du thermomètre sont chaudes, ce qui évite les écarts à la table de saturation. Au moment où les mesures sont stables on note toutes les mesures de nos sondes.

Nous avons fait les mesures plusieurs fois et les moyennes des résultats sont présentés dans le figure 30 B.

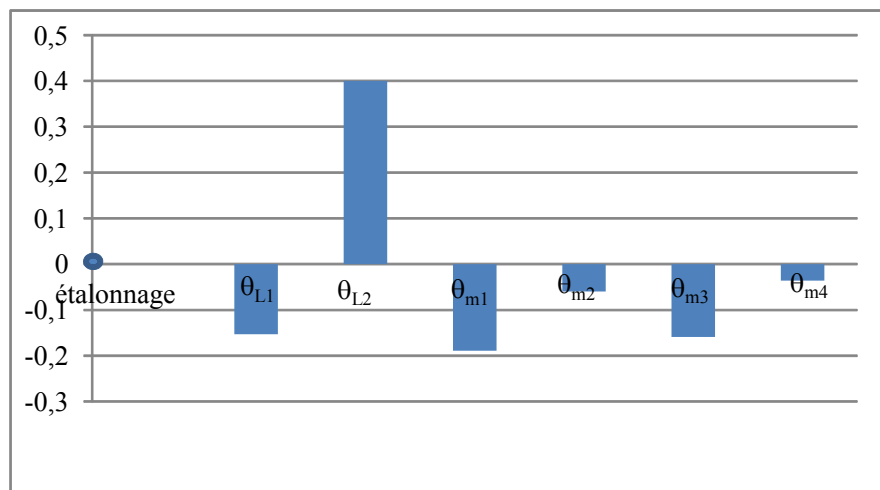


Figure 30 A: étalonnage des sondes Pt 100 au point 0 °C.

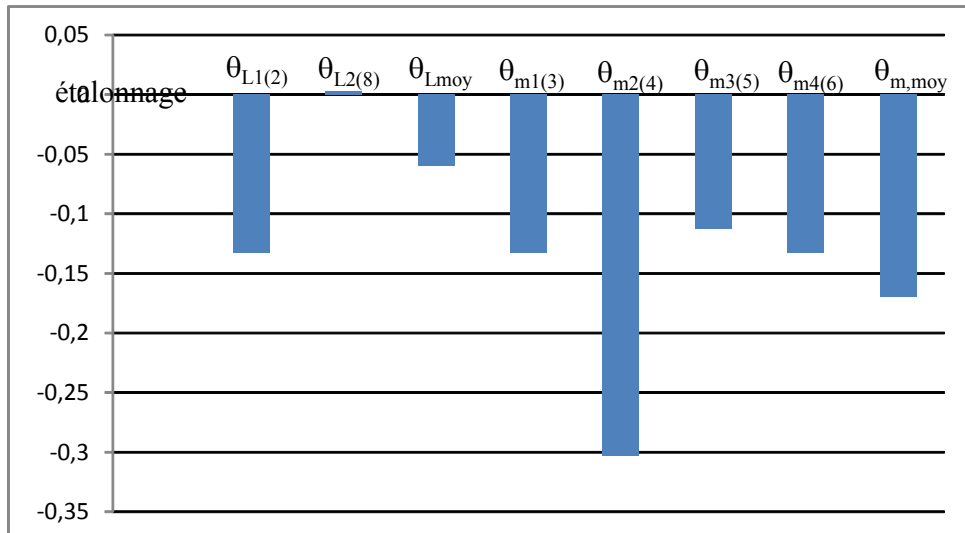


Figure 30 B: étalonnage des sondes Pt 100 pour l'eau pure qui bout à pression atmosphérique, les nombres entre parenthèses correspondent aux n° des sondes dans le montage.

Dans nos essais, nous mesurerons des températures entre 70°C et 106 °C. D'après l'étalonnage présenté dans la figure 30 (A, B), les écarts sont faibles (0,2 °C en moyenne, 0,4 °C au maximum), en incluant l'erreur liée à la centrale de mesure, de sorte qu'aucune correction n'a été faite sur les températures acquises par la centrale de mesure.

#### 2-6-2 -Etalonnage du débit volumique de liquide, en fonction de la variation de vitesse pour la pompe volumétrique.

Pour évaluer le débit volumique de liquide dans la pompe volumétrique, en fonction de la variation de vitesse, nous avons fait varier l'indice ( $I_v$ ) du variateur de vitesse intégré, de 20 à 100, avec un pas de 10. Pour chaque indice, nous avons mesuré le volume de liquide en fonction du temps, en utilisant une éprouvette graduée et un chronomètre, les résultats étant en figure 31.

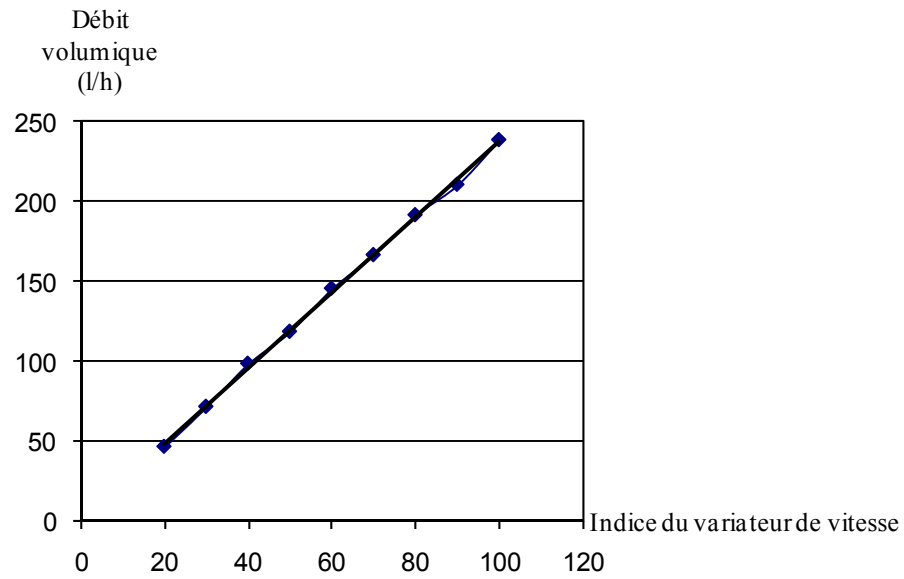


Figure 31 : évaluation du débit volumétrique en fonction de la vitesse de la pompe pour l'eau à température ambiante.

Par régression de la courbe présente en figure 31, on peut calculer le débit volumique en fonction de la vitesse de la pompe à partir de l'équation suivant :

$$\dot{V} = 2,37 I_v + 0,66 \quad R^2 = 0,999 \quad [76]$$

avec le débit volumique en L/h et  $I_v$  varie de 10 à 100.

D'une façon pratique, on peut relier le débit massique par m de périmètre du tube  $\Gamma$  à l'indice de pompe  $I_v$ , pour le périmètre du tube 9,42 cm et la masse volumique de l'eau  $\rho = 1000 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ , selon tableau 10.

| Indice de variateur de vitesse. | Débit volumique<br>l/s | Débit volumique<br>l/h | Débit volumique<br>par le périmètre<br>du tube<br>$\text{l.h}^{-1}.\text{cm}^{-1}$ | Débit volumique<br>par le périmètre<br>du tube<br>$\text{l. s}^{-1}.\text{m}^{-1}$ |
|---------------------------------|------------------------|------------------------|------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------|
| 10                              | 0,007                  | 24,4                   | 2,6                                                                                | 0,07                                                                               |
| 20                              | 0,0133                 | 48,0                   | 5,1                                                                                | 0,14                                                                               |
| 30                              | 0,0199                 | 71,8                   | 7,6                                                                                | 0,21                                                                               |
| 40                              | 0,0270                 | 96,0                   | 10,1                                                                               | 0,29                                                                               |
| 50                              | 0,0331                 | 119,0                  | 12,6                                                                               | 0,35                                                                               |
| 60                              | 0,0400                 | 143,0                  | 15,2                                                                               | 0,42                                                                               |
| 70                              | 0,0460                 | 166,6                  | 17,7                                                                               | 0,50                                                                               |
| 80                              | 0,0600                 | 190,0                  | 20,2                                                                               | 0,56                                                                               |
| 90                              | 0,0584                 | 214,0                  | 22,7                                                                               | 0,62                                                                               |
| 100                             | 0,0660                 | 238,0                  | 25,2                                                                               | 0,70                                                                               |

Tableau 10 : Le calcul de  $\Gamma_L$  à partir de l'équation 76.

Tous les résultats présentés dans le chapitre suivant, seront basés sur le tableau 10 et l'équation 76 pour évaluer le débit volumique par mètre de périmètre du tube ( $\Gamma_L$ ).

En conclusion, on a décrit le pilote conçu en vue de maîtriser les variables du procédé ( $\phi$ ,  $X_{MS}$ ,  $\theta_L$ ,  $\Gamma_L$ ) dans un domaine expérimental donné, et de mesurer en état stationnaire les grandeurs caractéristiques : températures, débit, pression, flux, etc. pour en déduire  $h$  expérimental.

Le chapitre III suivant présente les résultats expérimentaux, leur interprétation et leur modélisation.

# Chapitre III

## Résultats et discussion

### 3-1- Rappel de l'objectif

Rappelons que l'objectif initial de ce travail est de définir une méthode fiable et économique pour évaluer le coefficient de transfert de chaleur côté liquide en ébullition ( $h$ ), sans avoir besoin de mesurer au préalable les propriétés physiques des produits, pour deux raisons :

- d'abord parce que c'est un gros travail préliminaire à mener pour caractériser les propriétés thermo-physiques du produit dans les conditions du procédé (température, concentration, taux de cisaillement, ...) ;
- surtout parce que, malgré ce gros travail, les formules existantes basées sur ces propriétés physiques restent peu prédictives (cf. la grande dispersion des résultats démontrée au Chap. I).

Cependant pour interpréter les effets observés de certains paramètres sur  $h$  (viscosité  $\eta$ , et tension de surface  $\sigma$ ), et pour se comparer aux formules de la littérature, nous avons néanmoins mesuré certaines propriétés physiques, ce qui ne serait pas nécessaire dans l'objectif initial d'ingénierie.

De même, dans un but de compréhension, nous avons aussi étudié chaque paramètre séparément dans un plan d'expérience complet, permettant d'explorer l'effet de chaque facteur sur  $h$  « toutes choses égales par ailleurs », notamment pour un même flux  $\phi$ . Les lois de variation propres à chaque variable sont commentées et discutées, et donnent une orientation pour le formalisme de la loi à utiliser dans le modèle global proposé. Mais, au-delà de cette exploration, on fera plusieurs propositions de plans d'expériences simplifiés pour l'usage industriel.

Concernant les produits, nous avons utilisé l'eau comme produit de référence, et les jus sucrés à différentes concentrations (produit Newtonien), conduisant à une modélisation globale utilisable comme base de données caractéristique d'un produit.

On fera ensuite plusieurs propositions de plans d'expériences simplifiés pour l'usage industriel.

Puis nous avons comparé au cas d'un produit non Newtonien, pour évaluer ce qui change pour un produit particulier (carboxy-méthyl-cellulose CMC).

### 3-2- Résultats pour l'eau, produit de référence

#### 3-2-1- Effet du flux de chaleur $\phi$ ou de la différence de la température (surface / liquide)

$$\Delta\theta = (\theta_s - \theta_L).$$

Compte tenu d'éventuels effets couplés entre variables, pour étudier l'effet du flux de chaleur  $\phi$  sur  $h$ , nous avons maintenu fixés les autres paramètres de l'essai comme suit : débit massique sur le périmètre de tube  $\Gamma_L = 0,56 \text{ (l. m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}\text{)}$ , la pression de l'enceinte  $P \approx 1010 \text{ mbar}$ . La valeur de  $\Delta\theta$  est constatée pour chaque flux, mais on peut aussi bien représenter  $h = f(\phi)$ , ou  $h = f(\Delta\theta)$  pour se comparer à la littérature.

Pour l'eau pure, la variation de  $h$  en fonction de la différence de la température  $\Delta\theta$  est représentée sur la Fig. 32A, et en fonction du flux de chaleur  $\phi$  sur la Fig. 32B.

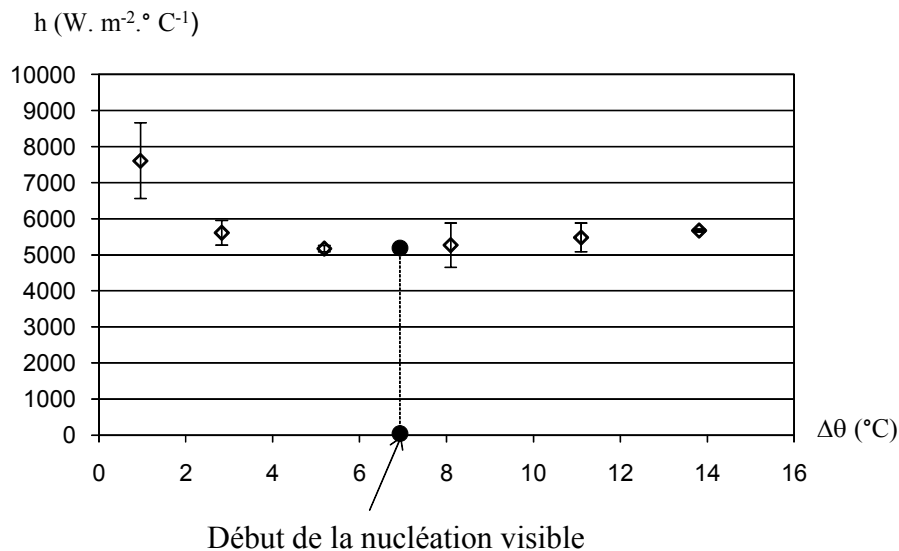


Figure (32A): Variation du coefficient de transfert  $h$  en fonction de la différence de température  $\Delta\theta$  (surface / liquide en ébullition) pour l'eau pure -  $P \approx 1010 \text{ mbar}$  et  $\Gamma_L = 0,56 \text{ (l. m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}\text{)}$  (Segment = écart type sur 3 mesures).

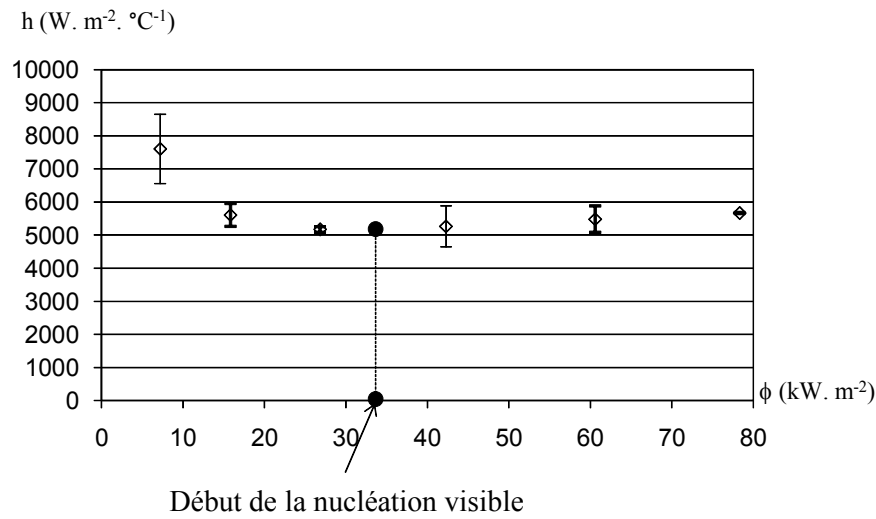


Figure (32B) : Variation du coefficient de transfert  $h$  en fonction du flux de chaleur  $\phi$  pour l'eau pure -  $P \approx 1010$  mbar et  $\Gamma_L = 0,56$  (l. m<sup>-1</sup>. s<sup>-1</sup>). (Segment = écart type sur 3 mesures).

Pour l'eau pure en ébullition en flot tombant, il apparaît que la valeur du coefficient de transfert de chaleur  $h$  dépend assez peu de la différence de température ou du flux de chaleur, dans le domaine de  $\Delta\theta = 2$  à  $15^\circ\text{C}$ , beaucoup moins que dans l'expérience de Nukiyama, ce qui pourrait différencier les mécanismes d'ébullition « en vase » et l'ébullition en « flot tombant ».

Au contraire, les valeurs de  $h$  les plus élevées sont observées quand la différence de la température est très faible ( $\Delta\theta \leq 1^\circ\text{C}$ ), ou le flux de chaleur très faible ( $\phi \leq 6$  kW. m<sup>-2</sup>). Ce dernier résultat reste difficile à expliquer, bien que déjà remarqué par Wedeker et al. (1993). Nous pouvons nous interroger sur l'effet des faibles pertes thermiques en haut et en bas de la zone de test (voire chapitre 2, pilote), qui ne sont plus négligeables aux très faibles flux, et qui peuvent augmenter de façon artificielle la valeur de  $h$  calculée. On peut aussi invoquer la précision des mesures de température, qui donne une plus grande incertitude aux faibles  $\Delta\theta$  (et  $\phi$ ), et donc aussi sur la valeur de  $h$  calculée. Pourtant, l'écart type de reproductibilité (sur 3 essais différents) confirme la croissance de  $h$  à faible  $\Delta\theta$  comme significative. Il reste que l'augmentation observée de  $h$  à très faible  $\Delta\theta$  demande à être confirmée. Même si ce domaine des très faibles  $\Delta\theta$  est peu utilisé en évaporation, il mériterait d'être approfondi dans certains cas concernant la compression mécanique de vapeur (CMV) par exemple.

Nous avons aussi recherché expérimentalement le début du régime nucléé « visible », où les bulles de vapeur apparaissent en surface du film de liquide, sachant que la nucléation a pu démarrer un peu avant, de façon moins visible. Avec l'eau pure, les bulles sont petites (diamètre 1 à 2 mm) et apparaissent sur certains sites « stationnaires », comme une petite excroissance en surface, un peu comme une « tête d'épingle ». On a aussi observé que le nombre des sites actifs de nucléation augmente avec l'augmentation de  $\Delta\theta$  ou  $\phi$ .

La transition du régime non nucléé au régime nucléé « visible » se situe à environ  $\Delta\theta = 7^\circ\text{C}$  ou à  $\phi = 36 \text{ kW} \cdot \text{m}^{-2}$  pour l'eau. Il apparaît que le flux de chaleur du « début de nucléation » pour l'eau pure en flot tombant est plus élevé que dans le cas de l'ébullition en vase, soit  $\phi \approx 35 \text{ kW} \cdot \text{m}^{-2}$  en flot tombant contre à peu près  $10 \text{ kW} \cdot \text{m}^{-2}$  en ébullition en vase (selon courbe de Nukiyama), mais la transition correspond à peu près au même  $\Delta\theta$ . Cette différence de flux peut décrire l'effet d'un film liquide plus mince en flot tombant, qui évacue mieux la chaleur reçue par vaporisation en surface du film, plus facilement qu'en vase où l'épaisseur à traverser est plus grande.

Dans le domaine nucléé, sans contredire le faible effet de  $\Delta\theta$ , on peut cependant remarquer une légère augmentation de la valeur du  $h$  avec  $\Delta\theta$  (faible pente positive entre  $5,5$  et  $15^\circ\text{C}$  figure 32A), ou avec le flux de chaleur entre  $30$  et  $80 \text{ kW} \cdot \text{m}^{-2}$  (figure 32B), phénomène qu'on retrouvera plus loin avec les jus sucrés, comme associé à la nucléation.

Nous avons comparé nos résultats expérimentaux  $h = f(\Delta\theta \text{ ou } \phi)$  avec les valeurs tirées des équations bibliographiques, pour l'eau pure en flot tombant, en régime turbulent et non nucléé, présentées en tableau (6) chapitre (I). Nous n'avons pas trouvé d'équations donnant  $h$  en fonction de  $\phi$  ou  $\Delta\theta$  en flot tombant et en régime nucléé, pour l'eau pure, dans la littérature. Malgré cette réserve, les valeurs calculées avec des formules du tableau (6) sont assez proches de nos résultats pour 3 d'entre elles, pour les différents flux explorés : ce sont les équations (2), (3) et (5) (Wilk, Ahmed & Kapariti et Chun & Seban), pour  $[2^\circ\text{C} < \Delta\theta < 15^\circ\text{C}]$  et/ou  $[10 < \phi < 80 \text{ kW} \cdot \text{m}^{-2}]$  (Figure 33).

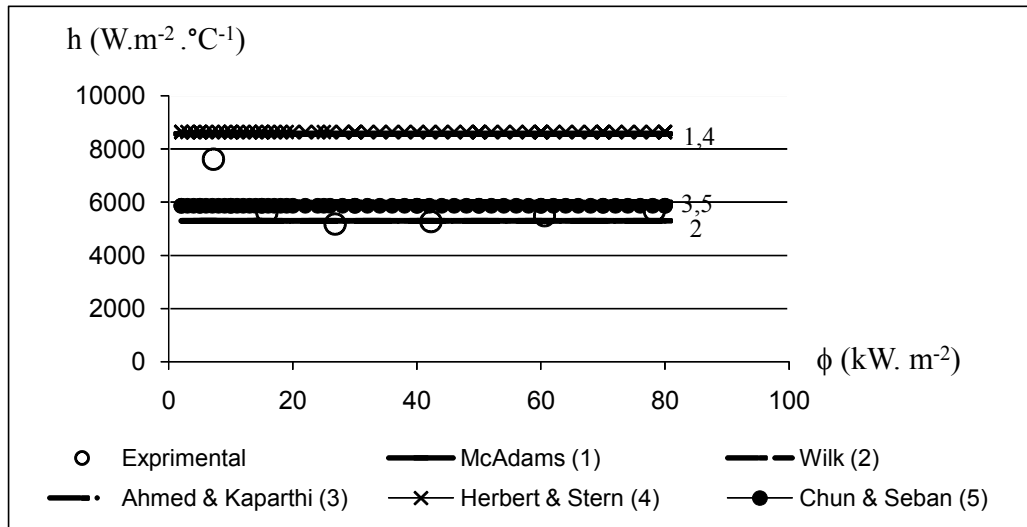


Figure (33) : Comparaison entre les résultats expérimentaux et les équations du tableau (6) pour l'eau pure, en ébullition non nucléée et évaporateur à flot tombant.

### 3-2-2 Effet de la pression $P$ ou de la température $\theta_L$ du liquide en ébullition

Il est classique dans l'industrie que le coefficient de transfert de chaleur  $h$  augmente quand la viscosité du liquide diminue. Ici, l'effet attendu du fait d'augmenter  $P$  est d'augmenter  $\theta_L$ , ce qui diminue la viscosité, et devrait augmenter  $h$ . Pour quantifier cet effet, nous avons fait varier  $P$ , avec les autres conditions suivantes maintenues constantes, pour l'eau pure : débit volumique sur le périmètre de tube  $\Gamma_L = 0,56 \text{ l. m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$  et flux de chaleur  $= 42 \text{ kW. m}^{-2}$ .

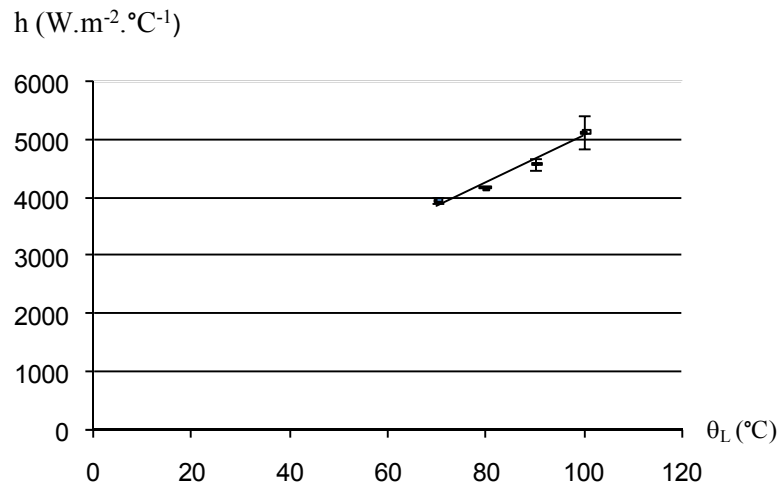


Figure (34) : Variation de coefficient de transfert de chaleur  $h$  en fonction de la température liquide  $\theta_L$ , pour l'eau pure à  $\phi$  et  $\Gamma_L$  constants. (Segment = écart type sur 3 mesures)

La figure 34 montre que  $h$  augmente nettement en fonction de la température  $\theta_L$  de l'eau en ébullition, ou de la pression  $P$  du système, d'une façon plus caractéristique que l'effet de  $\Delta\theta$  ou de  $\phi$  vus plus haut. La diminution correspondante de la viscosité de l'eau par augmentation de  $\theta_L$  ou  $P$  est ici :  $4 \cdot 10^{-4}$  (Pa. s) à 70°C jusqu'à  $2,79 \cdot 10^{-4}$  (Pa. s) à 100°C (Incropera et al 2002).

Selon la figure 34, l'augmentation de  $h$  en fonction de  $\theta_L$  peut être représentée (pour l'eau) par une loi quasi-linéaire dans le domaine de température étudié, même si la variation de viscosité ne suit pas une loi linéaire pour d'autres facteurs comme la concentration (nous reverrons ce point avec les jus sucrés).

### 3-2-3- Effet du débit volumique par unité de périmètre de tube ( $\Gamma_L$ )

Rappelons que, d'après la bibliographie, l'effet de  $\Gamma_L$  sur  $h$  est inverse selon le régime d'écoulement (laminaire ou turbulent), et intervient surtout dans le domaine d'ébullition non-nucléée. Les deux différents régimes d'écoulement sont distingués en bibliographie en calculant le nombre de "Reynolds de film" ( $Re_f$ ) (voir chap. I).

Pour évaluer l'effet de  $\Gamma_L$  sur  $h$ , les essais ont été effectués dans les conditions suivantes pour l'eau pure : deux flux de chaleur = 20 et 34 ( $\text{kW} \cdot \text{m}^{-2}$ ) et à  $P = 1022$  (mbar). La variation de  $h$  en fonction de  $\Gamma_L$  est représentée sur la figure 35.

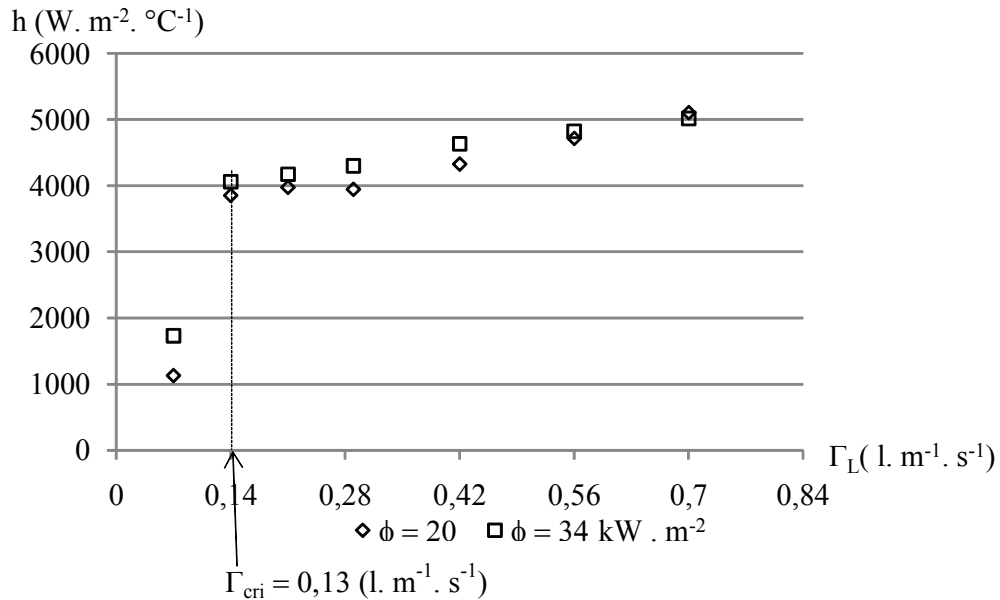


Figure (35) : Variation de coefficient de transfert de chaleur en fonction de  $\Gamma_L$  pour l'eau pure, à  $\phi = 20$  et  $34$  ( $\text{kW} \cdot \text{m}^{-2}$ ) et  $P = 1010$  mbar.

Sur la figure 35, nous pouvons distinguer 2 domaines, pour les deux différents flux de chaleur explorés :

I- à  $\Gamma_L > 0,14$  ( $\text{l} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ ),  $h$  augmente légèrement avec l'augmentation de  $\Gamma$ . En calculant le nombre de Reynolds en film  $Re_f = \frac{4\Gamma}{\eta}$  dans ce cas (pour l'eau pure à  $P = 1010$  mbar et  $\Gamma_L > 0,13$   $\text{l} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ ), il vient  $Re_f \geq 2000$  montrant que l'écoulement est en régime turbulent, du fait de la faible viscosité de l'eau. Nous retrouvons bien la conclusion bibliographique (chapitre I, §1-5-2-1) qui dit qu'en régime turbulent et en ébullition non nucléée,  $h$  augmente avec  $\Gamma$ .

II- à  $\Gamma_L \leq 0,13$  ( $\text{l} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ ), nous pouvons définir une valeur seuil appelée  $\Gamma_{\text{cri}}$ , telle qu'en dessous de cette valeur,  $h$  diminue nettement. Pour l'eau pure  $\Gamma_{\text{cri}} = 0,13$  ( $\text{l} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ ) pour les deux flux. L'interprétation est que le film de liquide ruisselant ne mouille plus totalement la paroi de chauffe. Des zones sèches visibles apparaissent, qui entraînent

l'augmentation de la température locale de la surface de chauffe, entraînant celle  $\theta_s$  moyenne, et la diminution du coefficient de transfert de chaleur moyen  $h$  calculé.

Ici, toutes les valeurs de  $\Gamma_L$  et en particulier la valeur de mouillage critique ( $\Gamma_{cri}$ ), sont obtenues en diminuant le débit volumique de la pompe. Nous avons observé des valeurs du débit critique ( $\Gamma_{cri}$ ) plus élevées quand on expérimente en augmentant le débit de la pompe (pour l'eau pure  $\Gamma_{cri} = 0,29 \text{ l. s}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ ), mais sans poursuivre cette méthode, pour éviter la destruction de la résistance électrique.

Nos résultats confirment ceux de Paraligam et al, 2000 à  $\theta_L = 55^\circ\text{C}$ ,  $\Gamma_{cri} = 0,2 \text{ (kg. m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$  et de Morison et al, 2006 à  $\theta_L = 20$  et  $60^\circ\text{C}$ ,  $\Gamma_{cri} = 0,104 \text{ (kg. m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$ , pour l'eau pure. Nous pouvons remarquer aussi que la valeur de  $\Gamma_{cri}$  est la même pour les deux différents flux de chaleur ( $20$  et  $34 \text{ kW. m}^{-2}$ ). Mais il est possible que  $\Gamma_{cri}$  dépende aussi du flux de chaleur pour des flux plus élevés, et nous verrons plus loin (jus sucrés) qu'il dépend aussi de la concentration de matière sèche ( $X_{MS}$ ).

Si la surface était chauffée à la vapeur (au lieu d'une résistance électrique), l'augmentation de la température  $\theta_s$  dans les zones sèches resterait limitée, mais la chute de  $h$  apparaîtrait également. La valeur de  $\Gamma_{cri}$  ici trouvée pour l'eau, soit  $\Gamma_{cri} = 0,13 \text{ (l.s}^{-1} \cdot \text{m}^{-1})$  ou  $500 \text{ (l.h}^{-1} \cdot \text{m}^{-1})$ , semble assez conforme à l'expérience industrielle, où on préconise plutôt dans la pratique un débit spécifique de  $1000 \text{ (l.h}^{-1} \cdot \text{m}^{-1})$ , avec une marge de sécurité et en fonction de la viscosité du produit (Communication personnelle GEA). S'il est relativement peu coûteux d'augmenter  $\Gamma$  au delà de  $\Gamma_{cri}$  par une pompe, cela augmente aussi le temps de séjour du produit dans l'évaporateur, et une meilleure connaissance de  $\Gamma_{cri}$  limite n'est pas inutile.

### 3-2-4 Etat stationnaire et hétérogénéité des températures

La figure 36 A et B présente l'enregistrement des mesures de températures en fonction du temps, pour une succession d'essais à flux croissant de  $7$  à  $80 \text{ kW. m}^{-2}$ .

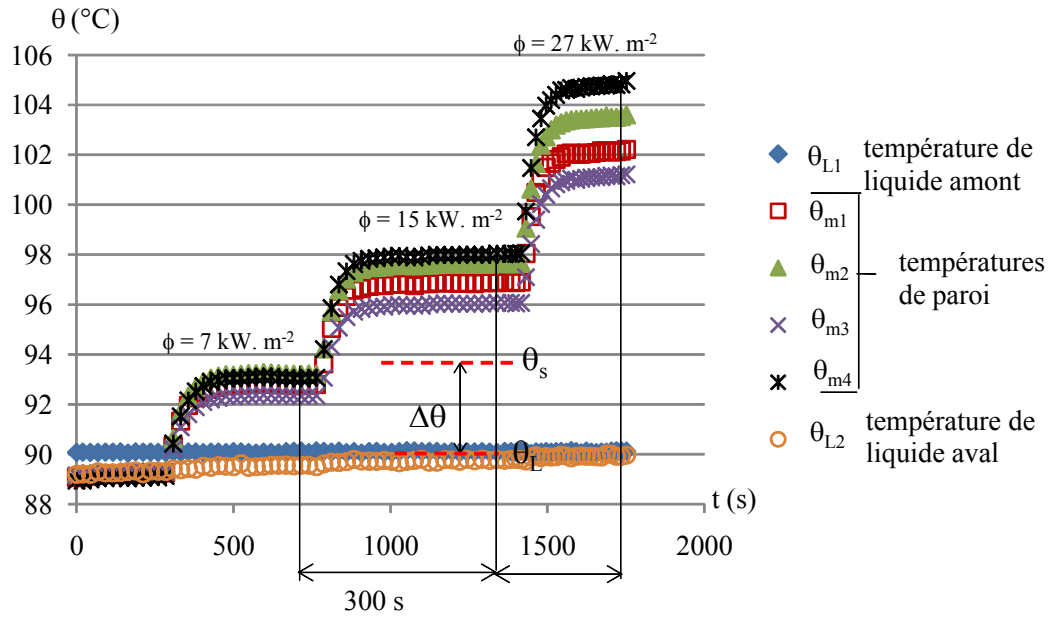


Figure 36 A : Enregistrement des mesures de températures de paroi et de liquide en ébullition en fonction du temps pour l'eau pure à  $P = 701$  mbar,  $\Gamma = 0,56$  l. s<sup>-1</sup>. m<sup>-1</sup> et  $\phi = (7, 15$  et  $27$  kW. m<sup>-2</sup>).

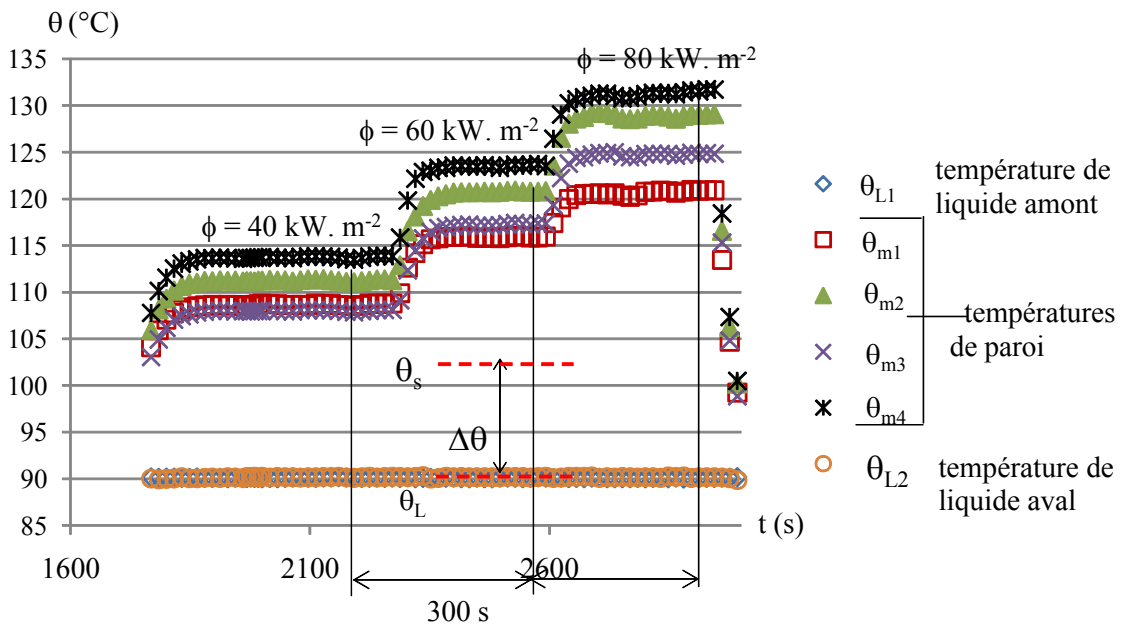


Figure 36 B : Enregistrement des températures de paroi et de liquide en ébullition en fonction du temps, pour l'eau pure à  $P = 701$  mbar,  $\Gamma = 0,56$  l. s<sup>-1</sup>. m<sup>-1</sup> et  $\phi = (40, 60$  et  $80$  kW. m<sup>-2</sup>).

Il apparaît que l'état stationnaire peut être obtenu après environ 5 minutes quand on fonctionne à flux de chaleur imposé, et quand le « saut » de consigne sur  $\phi$  assez petit. Seul le chauffage initial est plus long, pouvant s'accompagner d'une certaine transformation du produit, dans certains cas (protéines).

Sur la Fig. 36, il apparaît que l'écart de température entre les 4 sondes  $\theta_{m1}$  à  $\theta_{m4}$  placées dans la paroi augmente clairement avec le flux de chaleur. Une partie de cette hétérogénéité peut s'expliquer par le contact imparfait de la cartouche chauffante avec la surface d'échange de chaleur (surface interne du tube inox), bien que la chaleur soit supposée uniformément émise par la résistance. Mais le petit nombre de sites de nucléation observés est une autre cause possible de ces écarts. Même quand l'observation visuelle ne révèle pas de zone mal mouillée quand  $\Gamma_L \geq \Gamma_{cri}$ , l'épaisseur du film ruisselant n'est pas non plus forcément parfaitement uniforme, ce qui crée une hétérogénéité des transferts.

Il reste que le calcul de  $h$  en utilisant la température  $\theta_s$ , moyenne des quatre températures de surface  $\theta_{si}$  tirées des 4 mesures ( $\theta_{m1}$ ,  $\theta_{m2}$ ,  $\theta_{m3}$ ,  $\theta_{m4}$ ) avec le flux moyen donne des résultats répétables et qui suivent une évolution régulière quand  $\phi$  augmente, ce qui n'oblige pas à augmenter le nombre de capteurs dans la paroi. Comme par ailleurs il est difficile de mettre plus que quatre sondes sans perturber beaucoup le transfert dans la paroi, la disposition actuelle sera conservée par la suite du travail.

Quand le débit spécifique est plus faible,  $\Gamma_L < \Gamma_{cri}$ , l'hétérogénéité augmente de façon beaucoup plus nette, une des sondes devenant très chaude, ce qui explique la chute de  $h$  calculée sur la valeur moyenne  $\theta_s$ .

Pour vérifier la stationnarité des transferts dans le temps au delà de 5 minutes, nous avons maintenu le même flux pendant 45 minutes. Les résultats sont présentés en figure (37).

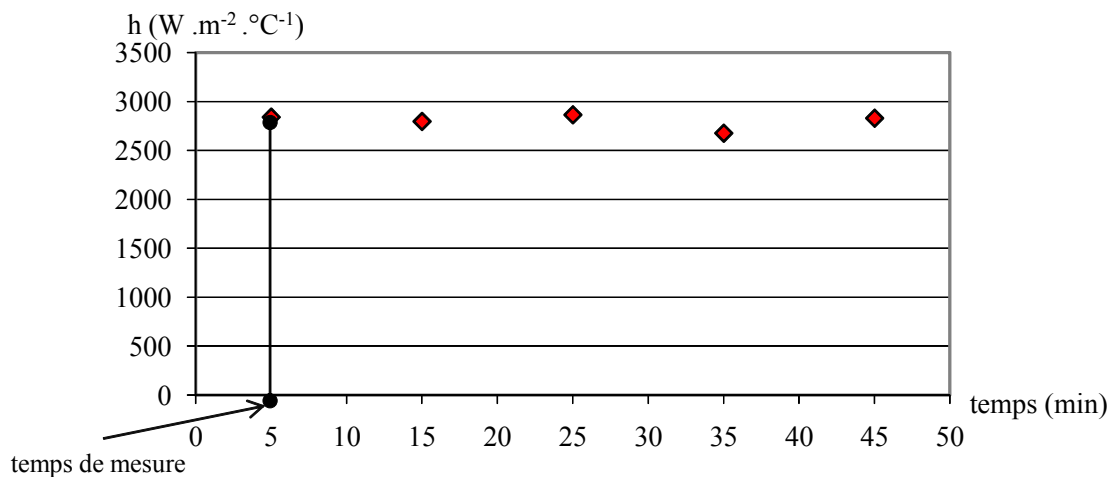


Figure (37) : Evaluation de  $h$  en fonction du temps à  $\phi = 10 \text{ (kW. m}^{-2}\text{)}$ ,  $P = 1008 \text{ mbar}$  et  $X_{MS} = 30 \text{ (}\%)$  et  $\Gamma = 0,21 \text{ (l. s}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}\text{)}$  « temps de mesure usuel ».

D'après les résultats présentés en figure (37), nous pouvons affirmer que la valeur de  $h$  ne varie pratiquement pas au-delà des 5 minutes (entre 5 et 45 minutes), en restant à flux de chaleur constant.

### 3-3- Etude d'un fluide Newtonien (Solution de saccharose):

Après l'eau, nous avons mesuré  $h$  pour des solutions de saccharose, pour quatre différentes concentrations de matière sèche à  $X = 10, 30, 50$  et  $70\%$  et comparé à l'eau pure ( $X = 0$ ).

#### 3-3-1- Effet du flux de chaleur ou de la différence de température $\Delta\theta$ (S/L) :

Toutes les mesures sont effectuées à pression atmosphérique  $P = 1010 \text{ mbar}$ ,  $\Gamma_L = 0,56 \text{ (l. m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}\text{)}$  et avec des valeurs de  $\phi$  variant de 2 à  $80 \text{ kW. m}^{-2}$ . La variation de  $h$  en fonction de  $\Delta\theta$  est représentée sur la figure 38A et en fonction de  $\phi$  sur la figure 38 B. Dans ce cas, la température  $\theta_L$  mesurée inclue l'élévation ébulliométrique EE selon :

$$\Delta\theta = \theta_s - \theta_L \text{ (}^\circ\text{C)} \quad \text{et} \quad \theta_L = (\theta_{\text{sat}} + \text{EE})$$

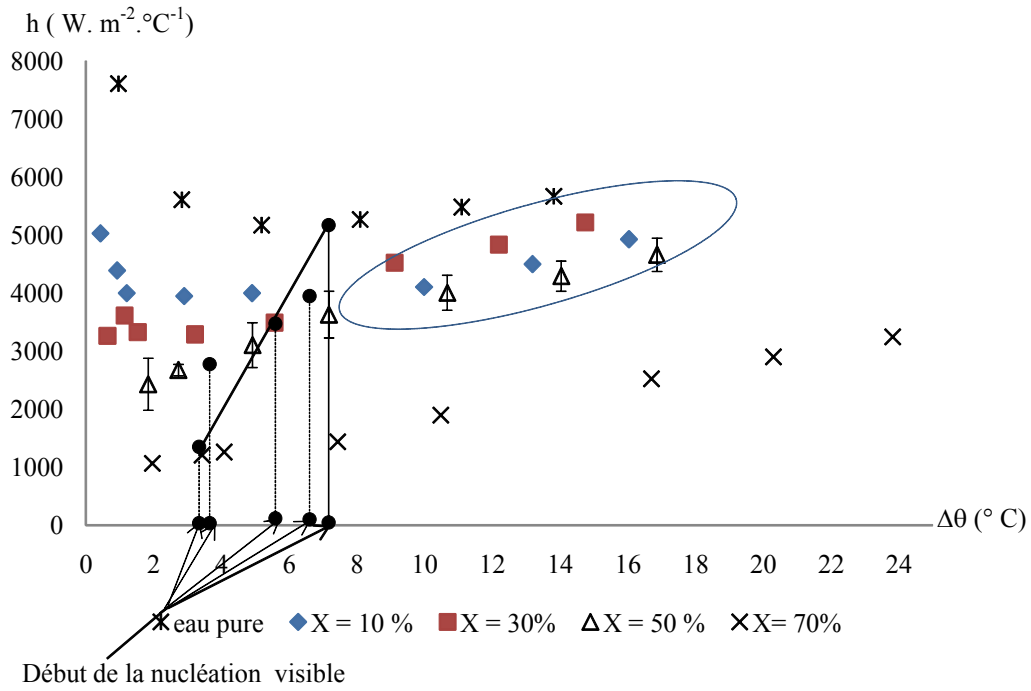


Figure (38A) : Variation de coefficient de transfert de chaleur  $h$  en fonction de  $\Delta\theta$  pour l'eau pure, et les solutions de saccharose de  $X_{\text{MS}} = 10, 30, 50$  et  $70\%$  à  $P = 1010$  mbar et pour  $\Gamma_L = 0,56$  ( $\text{l} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ ).

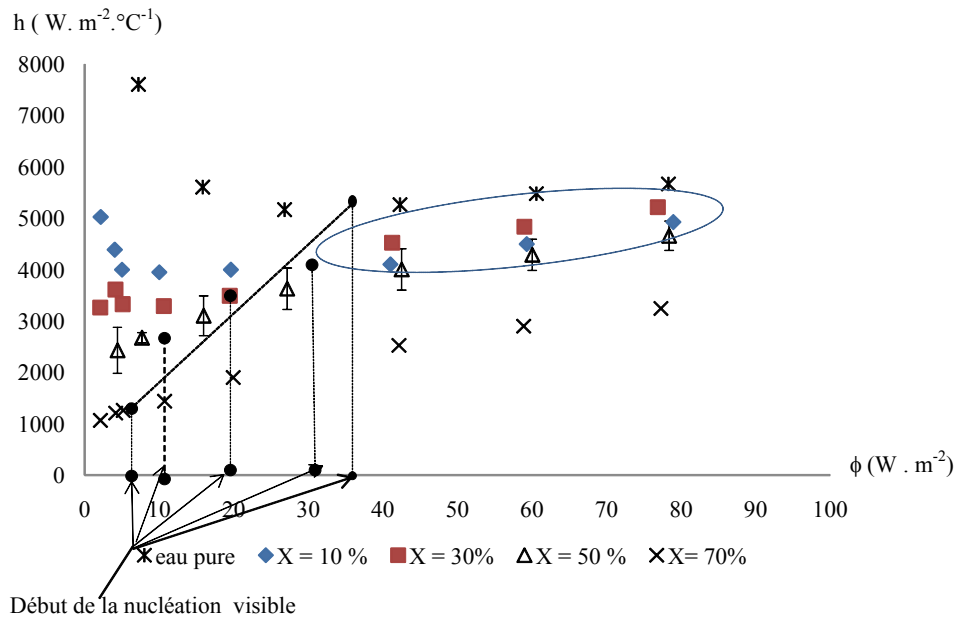


Figure (38B) : Variation de coefficient de transfert de chaleur en fonction de  $\phi$ , pour l'eau pure et les solutions de saccharose de  $X_{\text{MS}} = 10, 30, 50$  et  $70\%$  à  $P = 1010$  mbar et pour  $\Gamma_L = 0,56$  ( $\text{l} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ ).

D'après les résultats représentés ci-dessus, nous pouvons remarquer que :

1. Le faisceau des courbes montre un  $h$  qui diminue nettement quand  $X_{MS}$  augmente, ce qui décrit clairement l'effet de l'augmentation de viscosité, quand la concentration de matière sèche augmente depuis l'eau pure ( $X_{MS} = 0$ ) jusqu'à solution de saccharose  $X_{MS} = 70\%$ .
2. le début de la nucléation visible commence à un  $\phi$  plus faible quand la concentration de saccharose augmente. La ligne inclinée en figure 38A et 38B représente une interpolation des limites de nucléation visible observées : elle décrit le passage entre le régime non nucléé (à faible flux) et le régime nucléé (à plus fort flux). La pente de la courbe  $h = f(X_{MS})$  change à ce moment. C'est un avantage de notre pilote, de pouvoir observer le début de la nucléation, sachant que la limite est peu précise, et que la nucléation pourrait démarrer un peu avant le point marqué, sans qu'on la remarque.

Pour les différentes concentrations de matière sèche ( $X_{MS} = 10, 30, 50, 70\%$ ), le régime nucléé commence respectivement à  $\phi = 34, 18, 11$  et  $5,7$  ( $\text{kW} \cdot \text{m}^{-2}$ ) ou à  $\Delta\theta = 6,8 - 5,5 - 4,2 - 4$  ( $^{\circ}\text{C}$ ).

3. dans le domaine nucléé (à droite de la limite de nucléation visible), toutes les courbes montrent une augmentation de  $h$ , avec des pentes croissantes avec  $\Delta\theta$  et aussi avec  $X_{MS}$ . L'exposant change de  $h = f(\Delta\theta)^{0,05}$  à  $h = f(\Delta\theta)^{0,64}$  avec la concentration de matière sèche, ces exposants restant cependant plus faibles que pour la courbe de Nukiyama. (ébullition en vase). La comparaison avec la courbe de Nukiyama est présentée dans la figure 39.
4. l'écart entre  $h$  pour l'eau pure et jus sucré  $X_{MS} = 70\%$  est plus élevé avant le début de la nucléation visible qu'après la nucléation. Par exemple :
  - à  $\phi = 10 \text{ kW} \cdot \text{m}^{-2}$ ,  $h \approx 6000 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot ^{\circ}\text{C}^{-1}$  pour l'eau pure (non-nucléé) et  $h \approx 1200 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot ^{\circ}\text{C}^{-1}$  pour le jus sucré  $X_{MS} = 70\%$  ( $>$  limite de la nucléation),
  - à  $\phi = 80 \text{ (kW} \cdot \text{m}^{-2})$ ,  $h \approx 5670 \text{ (W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot ^{\circ}\text{C}^{-1})$  pour l'eau pure (nucléé), et  $h \approx 3200 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot ^{\circ}\text{C}^{-1}$  pour le jus sucré  $X_{MS} = 70\%$  (nettement nucléé).

L'apparition du régime nucléé semble donc un paramètre essentiel dans l'établissement de la valeur de  $h$ , quoique rarement prédit ou commenté dans les équations de la littérature.

5. selon figure 39, dans la zone nucléée, un modèle linéaire  $h = f(\Delta\theta \text{ ou } \phi)$  semble possible avec la variable  $\log(\Delta\theta)$ , plutôt que  $\Delta\theta$ , avec une pente fonction de  $X_{MS}$ .

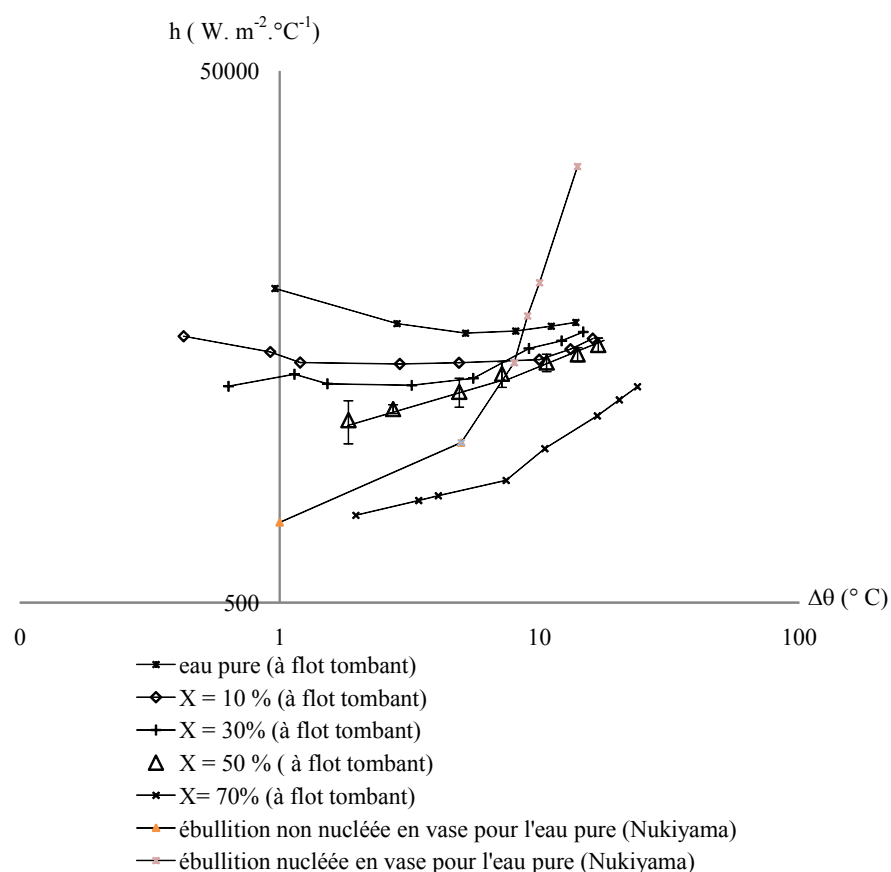


Figure 39 : Comparaison entre courbe de Nukiyama (ébullition en vase pour l'eau pure) et les courbes d'ébullition à flot tombant pour l'eau pure et les solutions de saccharose à  $X_{MS} = 10, 30, 50$  et  $70\%$  -  $P = 1010$  mbar et  $\Gamma_L = 0,56$  ( $\text{l. s}^{-1}.\text{m}^{-1}$ ).

La courbe de l'eau pure en flot tombant est au dessus de celle de Nukiyama, tant que  $\Delta\theta < 10^\circ\text{C}$ . Nous pouvons ici répondre à l'interrogation bibliographique avec le même produit (eau pure) ; le flot tombant donne un  $h$  plus élevé qu'en vase dans les faibles  $\Delta\theta$  (de 1 à  $9^\circ\text{C}$ ), et les équations d'ébullition nucléée en vase ne peuvent pas bien prédire cette situation même pour  $\Delta\theta > 5^\circ\text{C}$  (zone d'ébullition nucléée pour l'eau pure).

Par ailleurs, les jus sucrés jusqu'à 50% de concentration donnent des  $h$  supérieurs à ceux de l'eau pure en ébullition en vase (pour  $\Delta\theta < 10^\circ\text{C}$ ), malgré une viscosité bien plus élevée que

l'eau. Seule la courbe  $X_{MS} = 70 \%$  est entièrement sous celle de l'eau en ébullition en vase. On décrit bien un avantage des évaporateurs à flot tombant, de donner un coefficient de transfert de chaleur élevé même pour un produit visqueux.

Nous remarquons que les bulles de vapeur deviennent plus nombreuses et plus grosses au moment du détachement, quand la solution de saccharose est plus concentrée, à flux identique. Les propriétés de la paroi chauffante (rugosité) restent dans notre cas constantes, ou variant peu (angle de contact liquide -surface). Le nombre croissant de sites avec  $X_{MS}$ , l'abaissement de la température (ou du flux) de début de nucléation, peuvent être reliés à la présence de particules en suspension (impuretés) présentes dans le jus après dissolution, et dont la concentration augmente avec celle du sucre. Ce sont autant de germes de nucléation, favorisant la naissance des bulles de vapeur (une bulle de vapeur ne pourrait théoriquement pas prendre naissance dans un liquide (rayon initial nul) selon loi de Laplace (Sacadura, 2000). La présence des ces MES (matières en suspension) est d'ailleurs bien visible sur l'image de la goutte plus loin en Fig. 46.

Une image de l'ébullition nucléée pour jus sucré, de  $X_{MS} = 30\%$ ,  $P = 701 \pm 15$  mbar et à  $\phi = 40$  (kW. m<sup>-2</sup>), ruisselant sur une surface de l'acier inoxydable représenté en figure 40.

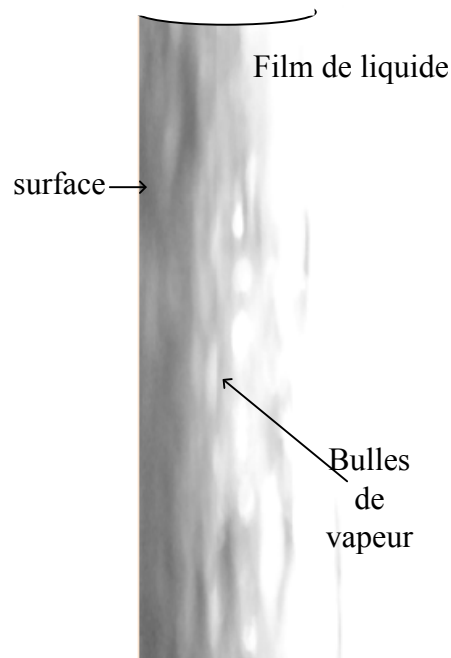


Figure 40 : photographie du tube test, pendant la nucléation en flot tombant pour du jus sucré à  $X_{MS} = 30\%$ ,  $P = 701$  mbar, à  $\phi = 40$  (kW. m<sup>-2</sup>) et à  $\Gamma_L = 0,56$  (l. s<sup>-1</sup>. m<sup>-1</sup>).

### 3-3-2-L'élévation ébulliométrique (EE °C)

L'élévation ébulliométrique est la différence entre la température d'ébullition d'une solution aqueuse de soluté non volatil  $\theta_L$  et la température d'ébullition de l'eau pure  $\theta_{sat}$  à la même pression (ex :  $\theta_{sat} = 100$  °C à pression atmosphérique (1013 mbar)), soit :

$$EE = (\theta_L - \theta_{sat})$$

L'abaque d'Othmer et Sylvis est utilisable pour la détermination de l'élévation du point d'ébullition des sirops de canne à sucre, ou plus généralement des solutions de saccharose, en fonction de la concentration en matière sèche, de la température et de la pureté. Par exemple, pour  $X_{MS} = 70\%$  à  $\theta_L = 100$ °C et pureté 100 %. →  $EE = 4,8$  °C

Notre pilote permet de mesurer l'élévation ébulliométrique du produit, dans les conditions de l'essai, à partir de la mesure de  $\theta_L$  et P. Par exemple, pour les solutions de saccharose  $X_{MS} = 10, 30, 50, 70\%$  à quatre différentes pressions (311, 474, 701, 1013 mbar), les résultats sont les suivants figure 41.

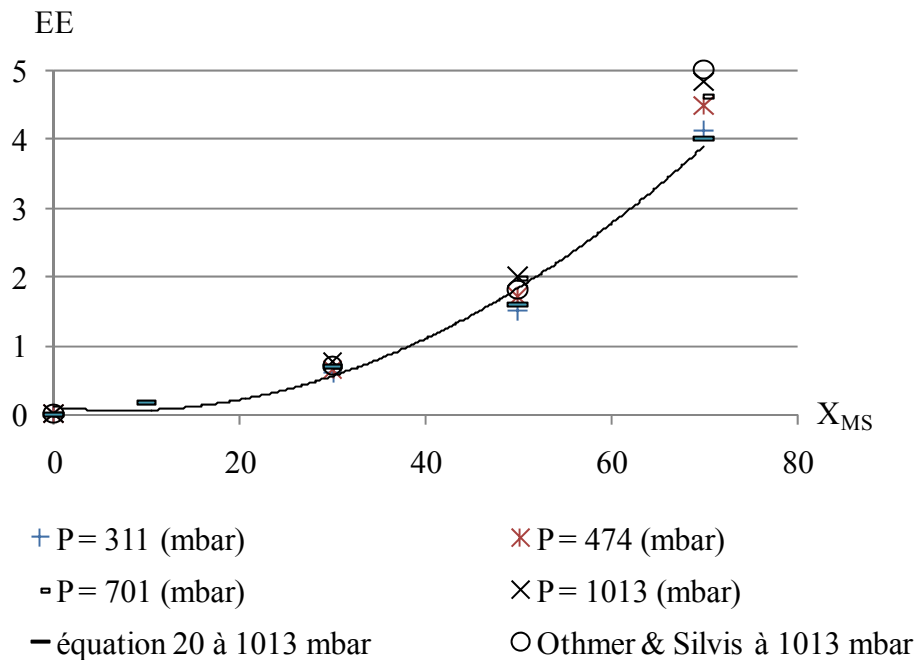


Figure 41 : Mesure de l'élévation ébulliométrique des solutions de saccharose, à 4 concentration en matière sèche ( $X_{MS}$ ) et 4 différentes pressions, comparer avec deux sources bibliographiques.

Il apparaît que les mesures de température du liquide en ébullition dans le pilote ( $\theta_{L1}$ ,  $\theta_{L2}$ ) sont très proches de l'élévation ébulliométrique de la référence (équation 20), pour les solutions de saccharose à différentes concentrations de matière sèche. On vérifie que les mesures de température expérimentales sont fiables, et on en déduit qu'on pourra utiliser le pilote de manière identique, pour caractériser  $EE = f(X)$  pour tout nouveau produit.

### 3-3-3- Effet de la concentration en matières sèche ( $X_{MS}$ )

Pour étudier l'effet de la concentration en matières sèches sur le coefficient de transfert de chaleur en ébullition, nous avons effectué les essais à  $\Gamma_L = 0,56$  ( $\text{l.s}^{-1}.\text{m}^{-1}$ ),  $P = 1010$  (mbar) et trois différents flux de chaleur ( $5, 20$  et  $80 \text{ kW.m}^{-2}$ ), pour quatre concentrations de jus sucré ( $X_{MS} = 10, 30, 50$  et  $70\%$ ) et comparé à l'eau pure comme référence.

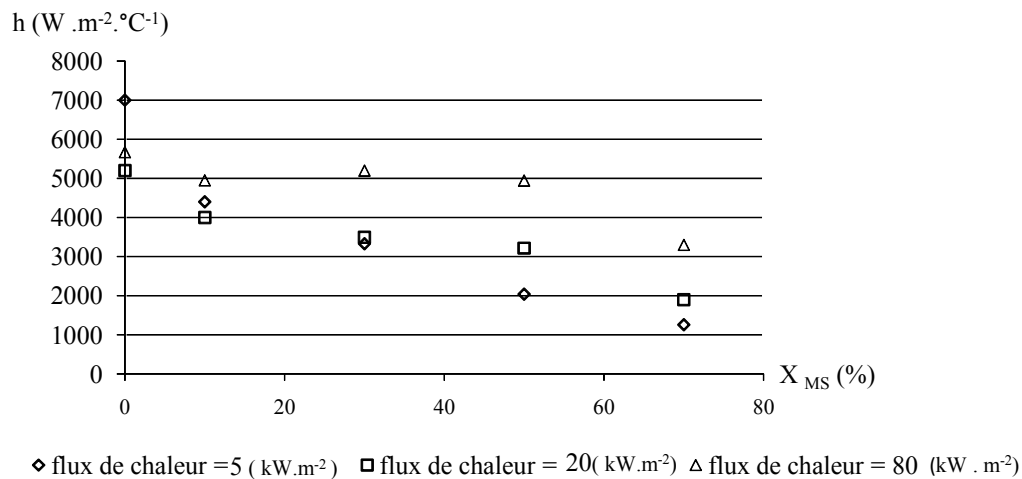


Figure (42) : Variation du coefficient de transfert de chaleur en fonction de  $X_{MS}$  pour les solutions de saccharose de  $X_{MS} = 10, 30, 50$  et  $70\%$  et l'eau pure, à  $P = 1010$  mbar,  $\Gamma = 0,56$  ( $\text{l.s}^{-1}.\text{m}^{-1}$ ) et pour trois différents flux de chaleur ( $5, 20$  et  $80 \text{ kW.m}^{-2}$ ).

D'après la figure (42), nous pouvons remarquer que  $h$  diminue quand la concentration de matière sèche augmente, pour les trois flux imposés. L'interprétation classique est que, quand la concentration en saccharose augmente, la viscosité de la solution augmente. Alors, pour un même flux de chaleur donné, le coefficient de transfert de chaleur diminue, du fait de l'augmentation de l'épaisseur du film ruisselant, qui augmente l'écart de température ( $\Delta\theta$ ).

utile aux transferts. Si on raisonnait à  $\Delta\theta$  constant ou bien de flux identique, les courbes précédentes seraient déplacées. Mais se donner  $\phi$  a priori, et que  $\Delta\theta$  en soit une conséquence, est une démarche possible de l'ingénierie.

La diminution de  $h$  avec l'augmentation de la concentration est nettement moins sensible à fort flux ( $80 \text{ kW} \cdot \text{m}^{-2}$ ), du fait du régime d'ébullition nucléée établi pour l'ensemble des points représentés. Au contraire, à  $2 \text{ kW} \cdot \text{m}^{-2}$ , on sait que tous les points sont en dessous de la limite de nucléation, et l'effet de la viscosité s'exprime plus fortement (pour un produit réputé Newtonien). Le passage d'un régime non-nucléé au régime nucléé est donc bien un paramètre essentiel pour établir  $h$ , à viscosité égale, sachant que cette transition est fort mal prédite actuellement (elle dépend à la fois de  $X_{\text{MS}}$  et du flux). Pacheco et al. 2004, ont remarqué une diminution à peu près 60% de  $h_g$  avec l'augmentation de la concentration de solution de saccharose de 15% à 40% à  $\Delta\theta_g \approx 5\text{-}8 \text{ }^\circ\text{C}$ .

A flux imposé comme ici, l'augmentation de la température de surface  $\theta_s$  reste toujours supérieure à l'augmentation d'élévation ébulliométrique (EE) du liquide concentré, même aux faibles flux de chaleur.

Pour une solution de saccharose de  $X_{\text{MS}} =$  de 10 à 70 %, un modèle linéaire semble acceptable pour la loi  $h = f(X_{\text{MS}})$ , au moins à flux modéré, bien que la loi  $\eta_L = f(X_{\text{MS}})$  soit en général très loin d'être linéaire. Mais il est clair que la loi  $h = f(X_{\text{MS}})$  décroissante doit être complétée (corrigée) par l'effet de  $\phi$  qui augmente  $h$  (fonction croissante).

### 3-3-4- Effet de la température du liquide en ébullition ( $\theta_L$ ) ou de la pression (P)

Nous avons mesuré le coefficient de transfert de chaleur pour quatre différentes pressions  $P = 311, 474, 701$  et  $1010 \text{ mbar}$ , à  $\Gamma_L = 0,56 \text{ (l} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}\text{)}$ , à deux différentes concentrations de matière sèche 30 et 70%, et à deux différents flux de chaleur 5 et  $20 \text{ (kW} \cdot \text{m}^{-2}\text{)}$ .

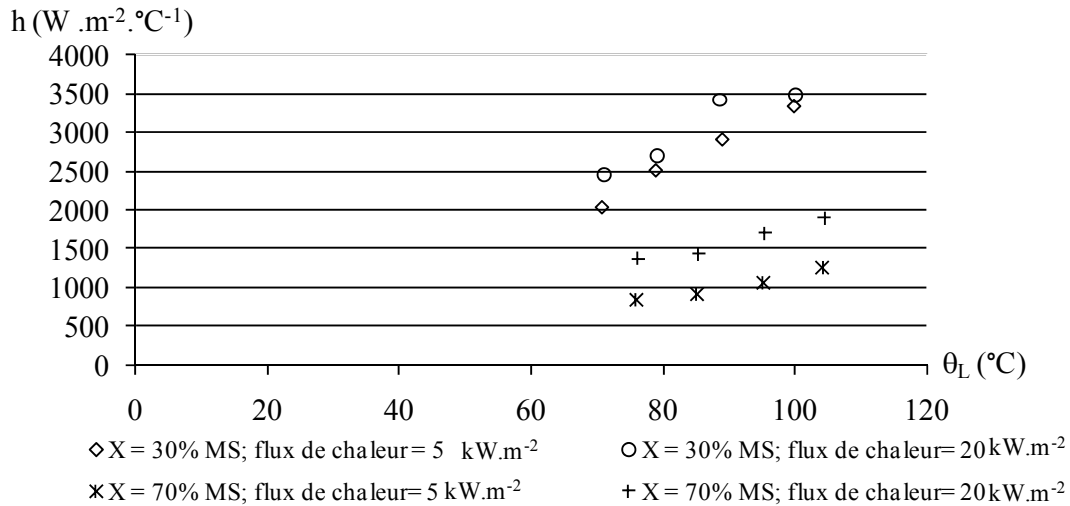


Figure (43) : Variation du coefficient de transfert de chaleur en fonction de  $\theta_L$ , correspondant à quatre pressions ( $P = 311, 474, 701$  et  $1010$  mbar), pour deux concentrations en saccharose,  $X_{MS} = 30$  et  $70\%$ ,  $\Gamma_L = 0,56$  ( $\text{l. s}^{-1}.\text{m}^{-1}$ ), et deux différents flux de chaleur ( $5$  et  $20 \text{ kW.m}^{-2}$ ).

Les valeurs indiquées de la température d'ébullition  $\theta_L$  ou  $P_{\text{sat}}$  des solutions de saccharose incluent l'élévation ébulliométrique (EE).

Toutes les courbes en figure (43) sont croissantes avec  $\theta_L$ , avec des pentes différentes selon les différentes concentrations en matière sèche et les flux de chaleur. Comme précédemment pour l'eau pure, l'interprétation classique est que l'augmentation de la température d'ébullition diminue la viscosité de la solution, ce qui augmente le coefficient de transfert de chaleur.

Pour chaque courbe des courbes présentées en figure 43, un modèle linéaire semble acceptable pour  $h = f(\theta_L)$ .

### 3-3-5- Interprétations basées sur la viscosité et la tension superficielle du jus sucré

Pour expliquer l'effet  $X_{MS}$  et  $\theta_L$  sur  $h$ , nous avons cherché à évaluer la viscosité des solutions de saccharose aux différentes concentrations  $X_{MS}$  (10, 30, 50 et 70) et aux différentes températures d'ébullition. On a aussi mesuré la tension superficielle  $\sigma_L$  des jus sucrés  $X_{MS}$  (10, 30, 50 et 70) à  $20\text{°C}$  et  $70\text{°C}$ , pour la relier aux variations de la température de début de nucléation entre les solutions étudiées.

### Evaluation de la viscosité des solutions sucrées

La viscosité est le facteur qui varie le plus au cours de la concentration, et on a vu au Chap. I que c'est celui qui a le plus d'impact sur la valeur de  $h$  parmi les propriétés physiques du liquide ( $\rho$ ,  $\lambda$  et  $C_p$ ), selon la littérature. Par exemple la viscosité de l'eau et d'un jus sucré à  $X_{MS} = 60\%$  diffèrent dans un rapport 24 ( $\eta_{\text{jus sucré}} = 24$  fois  $\eta_{\text{eau}}$ , à  $P = 311$  mbar, respectivement  $0,4 \times 10^{-3}$  Pa. s et  $9,66 \times 10^{-3}$  Pa. s), tandis que la conductivité thermique ne diffère que de 20% (respectivement  $\lambda_{\text{eau}} = 0,68$  et  $\lambda_{\text{jus sucré}} = 0,450$  W.m<sup>-1</sup>.°C<sup>-1</sup>).

Les valeurs de viscosité, pour les solutions de saccharose sont données par ICUMSA (ICUSMA, spécification et normes SPS-4, 1994), dans le domaine de concentration en matière sèche de 20% à 86% et de température de 0 à 80 °C.

Nous avons dû modéliser ces données, pour les extrapoler vers les températures plus élevées que 80 °C, et les concentrations plus faibles, sous la forme  $\eta = f(X_{MS}, \theta_L)$  de la façon suivante: pour la température, par une relation d'Arrhenius (eq. 5), et pour la concentration en matière sèche, par la relation entre la viscosité spécifique  $\eta_{\text{spe}}$  et la concentration (eq. 6).

- A partir des bases de données ICUMSA (SPS-5, 1994, page 2) pour jus sucré de  $X_{MS}$  de 20 à 86 % et température de 0 à 80 °C, nous avons identifié et extrapolé la fonction  $(\ln \eta) = f(1/T)$ , en utilisant la relation d'Arrhenius pour chaque domaine de concentration. Les modèles sont présentés en annexe (2, équations 1 à 3). Nous en tirons une évaluation de la viscosité des solutions de saccharose (30, 50, 70 % MS) aux températures d'ébullition de 80 à 110 °C.
- A partir des résultats obtenus précédents, et de la relation entre la viscosité spécifique et la concentration de matière sèche, nous avons obtenu les valeurs de viscosité à  $X_{MS} = 10\%$  pour les différentes températures d'ébullition, correspondant à  $P = 311, 474, 701, 1010$  mbar. Les 4 calculs sont présentés en annexe (3).

Nous avons pu ainsi évaluer approximativement toutes les valeurs de viscosités utiles des solutions de saccharose, même celles n'existaient pas dans la base de données ICUMSA. La figure 44 montre la variation du coefficient de transfert de chaleur  $h$  expérimental, en fonction des viscosités, soit existantes dans les bases de données, soit calculées, pour les solutions de saccharose ( $X_{MS} = 10, 30, 50$  et  $70\%$ ) et l'eau pure

( $X = 0$ ), à diverses pressions ( $P = 311, 474, 701$ , et  $1010$  mbar), à deux flux de chaleur ( $\phi = 20$  et  $80 \text{ kW.m}^{-2}$ ), et même  $\Gamma_L = 0,56 \text{ (l.s}^{-1}.\text{m}^{-1})$ . On a comparé nos valeurs au modèle bibliographique (Van de Poel et al. 1998) pour les jus sucré, sachant qu'il s'agit alors d'un  $h_{\text{global}}$  forcément un peu inférieur à  $h$ .

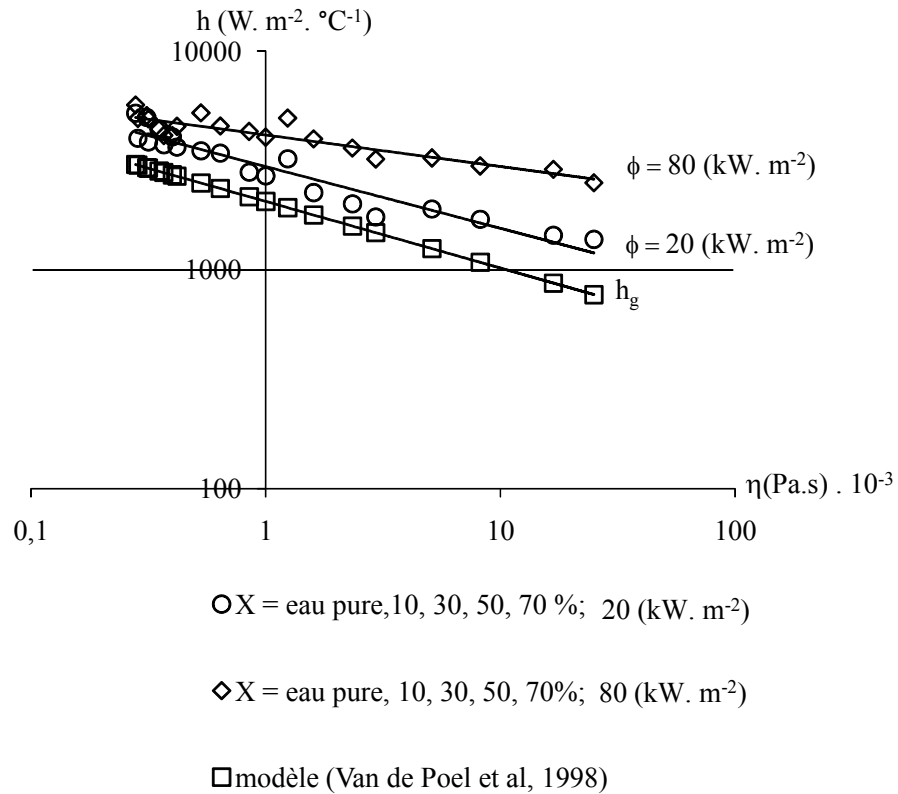


Figure (44) : variation de  $h$  expérimental en fonction de la viscosité, pour l'eau pure et des solutions de saccharose ( $X_{\text{MS}} = 10, 30, 50, 70 \%$ ),  $\Gamma_L = 0,56 \text{ (l.s}^{-1}.\text{m}^{-1})$ , pour deux  $\phi = (20 \text{ et } 80 \text{ kW.m}^{-2})$  pour 4 pressions  $P = 311, 474, 701$  et  $1010$  mbar, et comparaison avec le modèle Van de Poel ( $h_g$ ).

$$\text{Modèle Van de Poel et al.1998 : } h_g = 2055. \eta^{-0,35} \quad [77]$$

D'après la figure 44,  $h$  en fonction de la viscosité (allant de l'eau pure aux solutions de saccharose) rassemble l'effet des différentes  $\theta_L$  et à différents pressions ( $P = 311, 474, 701$  et  $1010$  mbar) et  $\Gamma_L = 0,56 \text{ (l.s}^{-1}.\text{m}^{-1})$ , pour chacun des flux différents  $\phi = 20$  et  $80 \text{ (kW.m}^{-2})$  par les équations empiriques suivants :

$$\text{- pour } \phi = 20 \text{ (kW.m}^{-2}\text{)} \quad h = 2969 \cdot \eta^{-0,28} \quad R^2 = 0,92 \quad [78]$$

$$\text{- pour } \phi = 80 \text{ (kW.m}^{-2}\text{)} \quad h = 4140 \cdot \eta^{-0,14} \quad R^2 = 0,84 \quad [79]$$

avec la viscosité en mPa.s (de 0,279 à 25) et  $h$  en  $\text{W.m}^{-2}.\text{°C}^{-1}$  pour les trois équations (77, 78, 79).

Il est évident dans l'équation 79 que l'effet de la viscosité sur  $h$  est moins sensible à flux de chaleur est élevé (plus faible exposant).

Ces résultats confirment que la viscosité, qui varie dans un rapport élevé au cours de la concentration (par exemple de 1 to 25) a un effet important sur  $h$ , mais que l'effet du flux de chaleur  $\phi$  sur  $h$  ne peut pas être négligé (deux courbes nettement différentes), et surtout à concentration de matière sèche élevée ( $> 30\%$ ).

Si ces résultats semblent nous orienter vers une modélisation du type  $h = f(\log \eta)$ , nous verrons plus loin que la forme polynomiale linéaire  $h = f(X_{\text{MS}}, \theta_L, \phi, \dots)$  semble suffisante, qui n'inclue pas la viscosité de façon explicite, mais implicite dans  $X_{\text{MS}}$  et  $\theta_L$ .

### Mesure de la tension superficielle

Pour explorer l'effet de la tension superficielle du liquide sur  $h$  et en particulier sur le début de la nucléation, nous avons mesuré la tension superficielle  $\sigma$  de nos solutions pour différentes concentrations (eau pure,  $X_{\text{MS}} = 10, 30, 50$  et  $70\%$ ). Les valeurs expérimentales sont présentées en figure (45) à  $25 \text{ °C}$  en fonction du temps.

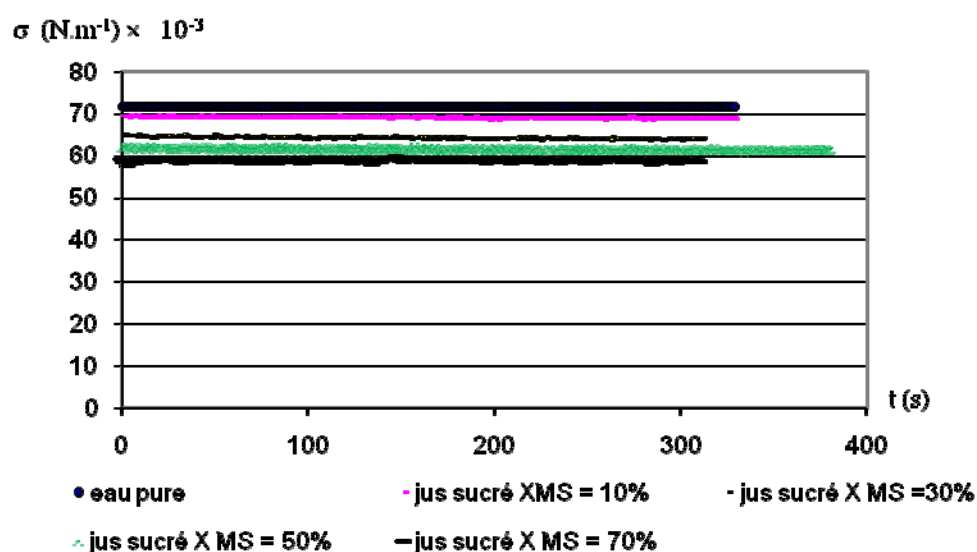


Figure 45 : évaluation de la tension superficielle, de jus sucrés  $X_{MS}$  = de 10 % à 70% et de l'eau pure, en fonction de temps à 25 °C.

D'après la figure 45, nous pouvons remarquer que la tension superficielle est stable dans le temps, et diminue assez peu avec la concentration, de  $71 \times 10^{-3} \text{ (N. m}^{-1}\text{)}$  pour l'eau pure à  $59 \times 10^{-3} \text{ (N. m}^{-1}\text{)}$  pour le jus sucré à  $X_{MS} = 70\%$ .

D'autres mesures ont été effectuées à température plus élevée  $\theta_L = 65^\circ \text{ C}$  et à temps fixe ( $t = 60 \text{ s}$ ), soit  $\sigma = 63,2\text{-} 58\text{-} 57\text{-} 55,3 \text{ (N. m}^{-1}\text{)}$  respectivement pour  $X_{MS} = 10, 30, 50, 70\%$ .

Les variations de la tension superficielle avec  $X_{MS}$  et  $\theta$  restent faibles (par rapport aux variations de la viscosité), et les conséquences sur la nucléation, et donc sur  $h$ , restent peu prévisibles.

Par contre, les photos de la bulle d'air dans la solution de saccharose (figure 46) ont révélé la présence d'impuretés sous forme de particules non solubles (matières en suspension = MES) dans la solution de sucre, et qui peuvent intervenir pour augmenter le nombre de sites de nucléation. La figure (46) montre la différence de concentration en MES dans jus sucré  $X_{MS} = 10\%$  et  $X_{MS} = 70 \text{ (}\%)$ .

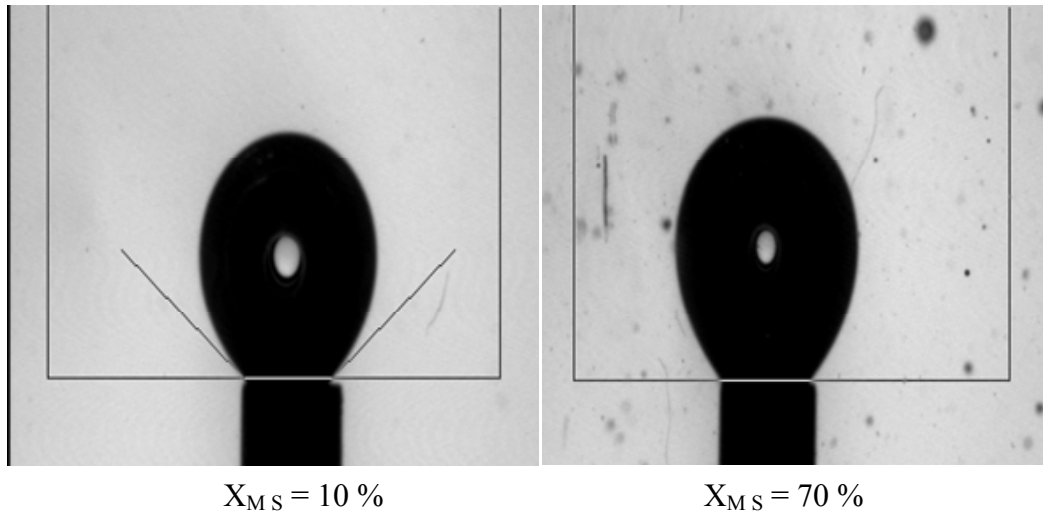


Figure 46 : la comparaison entre solution de saccharose de  $X_{MS} = 10\%$  et  $X_{MS} = 70\%$ , photos prises quand nous avons mesuré la tension superficielle des solutions de saccharose.

Cette différence de concentration des MES entre la solution  $X_{MS} = 70\%$  et  $X_{MS} = 10\%$  peut expliquer le début de nucléation à  $\Delta\theta$  ou  $\phi$  plus faible quand la concentration de matière sèche est élevée (figures 38 A et B), sans faire intervenir la diminution de  $\sigma_L$  qui est très faible.

### 3-3-6- Effet du débit volumique par unité de périmètre de tube ( $\Gamma_L$ ) :

Nous avons mesuré le coefficient de transfert de chaleur  $h$  en ébullition en fonction de  $\Gamma_L$  pour une solution de saccharose à  $X_{MS} = 50\%$  et à  $P = 1010$  mbar et à deux différents flux de chaleur = 20 et 34 ( $\text{kW} \cdot \text{m}^{-2}$ ). Nous avons comparé les résultats avec ceux de l'eau pure à  $\phi = 20$  ( $\text{kW} \cdot \text{m}^{-2}$ ) et à  $P = 1010$  mbar. Les résultats présentés en figure (47) montrent que:

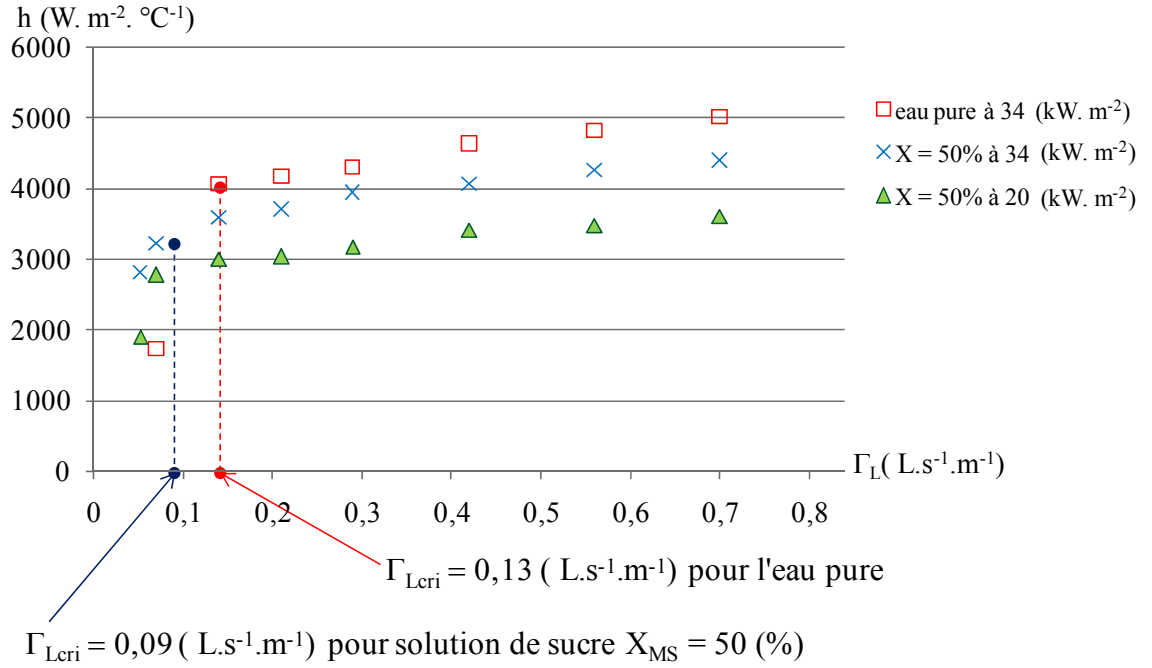


Figure 47 : variation de  $h$  en fonction  $\Gamma_L$  pour des solutions de sucre  $X_{\text{MS}} = 50\%$  à  $\phi = 20$  et  $34 (\text{kW.m}^{-2})$  et pour l'eau pure à  $\phi = 20 (\text{kW.m}^{-2})$  et à  $P = 1010 \text{ mbar}$ .

- I. à  $\Gamma_L > \Gamma_{\text{cri}} (\text{l.m}^{-1}.\text{s}^{-1})$ ,  $h$  augmente légèrement avec l'augmentation de  $\Gamma_L$  pour les trois courbes, ce qui correspond au cas d'un régime d'écoulement turbulent. Dans le cas de jus sucré  $X_{\text{MS}} = 50\%$  à  $P = 1010 \text{ mbar}$ , le nombre de Reynolds en film ( $Re_f = \frac{4\Gamma}{\eta}$ ) pour  $\Gamma =$  de  $0,09$  à  $0,54$ ,  $Re_f$  varie de  $290$  à  $1750$ . Le nombre de Reynolds de film critique (eq. 49) dans les mêmes conditions est  $Re_{fc} = 700$ , c'est-à-dire que dans ce domaine, tous les points sont bien en régime turbulent selon ce critère.
- II. à  $\Gamma_L < \Gamma_{\text{cri}} (\text{l.s}^{-1}.\text{m}^{-1})$ , nous pouvons définir une valeur de  $\Gamma_{\text{cri}}$ , telle que  $h$  décroît nettement par suite de dessèchement local (visible). En dessous de cette valeur, le film de liquide ruisselant sur la paroi ne mouille plus totalement la paroi de chauffe, Pour la solution de saccharose  $X_{\text{MS}} = 50\%$  et pour les deux différents  $\phi = 20$  et  $34 (\text{kW.m}^{-2})$ ,  $\Gamma_{\text{cri}} \approx 0,1 (\text{l.s}^{-1}.\text{m}^{-1})$ . Les zones sèches sur la paroi, entraînent l'augmentation de la température moyenne ( $\theta_s$ ) de la surface de chauffe, et la diminution de  $h$  moyen, à  $\phi$  imposé.

D'après les résultats précédents, nous pouvons remarquer que  $\Gamma_{\text{cri}}$  baisse quand on passe de l'eau pure au jus sucré à  $X_{\text{MS}} = 50 \%$  (à  $P$ ,  $\phi$ , ... identiques). Cette observation a été comparée à [Hartely et al, 1964 et Morison et al, 2006] qui décrivent dans un premier papier, que  $\Gamma_{\text{cri}}$  augmente avec la tension superficielle du liquide ( $\sigma_L$  diminue en passant de l'eau au sucre) et avec la viscosité (qui augmente). Mais Morison et al, 2006 dans un second papier critiquant le précédent (?) décrivent que  $\Gamma_{\text{cri}}$  augmente avec la tension superficielle du liquide, mais diminue quand viscosité augmente (exposant négatif), ce qui correspond plutôt à notre observation.

Selon Paramalingam et al, 2000, les valeurs de  $\Gamma_{\text{cri}}$  sont  $\Gamma_c = 0,19$  et  $0,14$  ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ) respectivement pour l'eau pure et le lait  $X_{\text{MS}} = 40 \%$  et à  $55^\circ\text{C}$ . La logique est la même avec des valeurs critique supérieures aux nôtres.

Aussi, peut être, le séchage sur la surface de test aura lieu avec l'augmentation de flux de chaleur jusqu'à flux de chaleur « dits critique » [Wang et al. 2000].

Remarque : toutes les valeurs décrites du mouillage critique ( $\Gamma_{\text{cri}}$ ) sont obtenues en diminuant le débit. La limite pratique industrielle ( $\Gamma_{\text{min}}$ ) pourrait être plus élevée ( $\alpha \Gamma_{\text{cri}}$ ), où  $\alpha$  est un coefficient de sécurité de  $1,5$  à  $2 \Gamma_{\text{cri}}$ , et  $\Gamma_{\text{cri}}$  étant une fonction de  $\sigma$  et  $\eta$ , et donc de la concentration  $X_{\text{MS}}$ . Mais pas en fonction du flux.

**3-3-7- Conclusion partielle :** D'après les résultats obtenus pour l'eau pure et les solutions de saccharose, nous pouvons remarquer que :

- L'effet du flux de chaleur  $\phi$ , ou de la différence de température  $\Delta\theta$  (S/L), sur le coefficient de transfert de chaleur en ébullition  $h$  est assez faible en flot tombant, pour l'eau pure et les solutions de saccharose diluées ( $X_{\text{MS}} < 30\%$ ), même dans le régime nucléé pour  $\phi > 20$  ( $\text{kW} \cdot \text{m}^{-2}$ ).
- Par contre, l'effet du flux de chaleur  $\phi$ , ou de la différence de température  $\Delta\theta$  (S/L) sur  $h$  en ébullition n'est plus du tout négligeable pour les solutions de saccharose concentrées ( $X_{\text{MS}} > 30\%$ ), et surtout dans le régime nucléé, à fort flux. Par exemple  $h = f(\phi^{0,12})$  pour solution de saccharose "peu concentrées"  $X_{\text{MS}} = 30\%$  et  $f(\phi^{0,39})$  pour les fortes concentrations  $X_{\text{MS}} = 70\%$ . C'est pourquoi nous garderons le facteur  $\phi$  dans la modélisation globale de  $h$  en flot tombant.

- L'effet de la concentration de matière sèche  $X_{MS}$  et de la température d'ébullition  $\theta_L$  (ou  $P$ ) sont les plus importants sur  $h$ , présentant l'effet de la viscosité, mais sans avoir besoin de mesurer  $\eta$ .
- Nous définissons un  $\Gamma_{cri}$  tel que, pour  $\Gamma_L > \Gamma_{cri}$ , des zones sèches n'apparaissent pas.

### 3-4 Modélisation dans le cas d'un liquide Newtonien (solutions de saccharose)

#### 3-4-1- plan d'expérience complet

Le plan d'expérience complet est utilisé pour modéliser globalement les lois de variation de  $h$  en fonction des 4 paramètres du procédé  $h = f(\phi, X_{MS}, \theta_L \text{ et } \Gamma_L)$  dans le domaine des variables étudié (voir tableau 7).

La température de liquide  $\theta_L$  est toujours définie à l'ébullition, incluant l'élévation ébulliométrique (EE) des solutions de saccharose:  $\theta_L = (\theta_{sat} + EE)$  et  $\Delta\theta = (\theta_s - \theta_L)$ .

Nous avons ainsi effectué 640 essais, correspondant à 16 jours d'essai environ, mais nous présenterons plus loin des moyens de limiter le nombre d'essais pour un produit donné, selon un plan simplifié, tout en décrivant suffisamment le produit.

#### 3-4-2 Modèle polynomial linéaire : applicable aux jus sucrés.

Nous explorons d'abord la possibilité d'un modèle linéaire simple, pour estimer  $h$  sous la forme :

$$h = a + b \phi + c X_{MS} + d \Gamma_L + e \theta_L \quad (\text{soit 5 coefficients à identifier})$$

L'analyse des résultats avec la régression pour le jus sucré et dans tous les domaines d'étude (Tableau 7), à partir d'une matrice de variables :

$$\text{Var} = \begin{bmatrix} \alpha & \phi_1 & X_{MS1} & \theta_{L1} & \Gamma_{L1} \\ \alpha & \phi_2 & X_{MS2} & \theta_{L2} & \Gamma_{L2} \\ - & - & - & - & - \\ - & - & - & - & - \\ - & - & - & - & - \\ - & - & - & - & - \\ \alpha & \phi_n & X_{MSn} & \theta_{Ln} & \Gamma_{Ln} \end{bmatrix}, \text{ matrice (une colonne) des coefficients } A = \begin{bmatrix} a \\ b \\ c \\ d \\ e \end{bmatrix} \text{ et une}$$

$$\text{matrice (une colonne) de résultats expérimentaux } H : H = \begin{bmatrix} h_1 \\ h_2 \\ - \\ - \\ - \\ - \\ h_n \end{bmatrix}.$$

Pour calculer les coefficients  $a, b, c$  et  $d$ , nous avons utilisés l'équation suivant :  $A = \text{Var} \setminus H$ .  
Les résultats de régression sont présentés dans l'équation suivante :

$$\boxed{h = 507 + 23 \cdot \phi - 39 X_{Ms} + 977 \cdot \Gamma_L + 32 \cdot \theta_L} \quad (R^2 = 0,88) \quad [80]$$

On utilise comme critère pour juger de la qualité de l'ajustement, le coefficient de détermination ( $R^2$ ) défini comme suit:

- ✓ la somme des carrés résiduelle  $SCR = \sum (h_{\text{expérimental}} - h_{\text{modèle}})^2$
- ✓ la somme des carrés par régression  $SCM = \sum (h_{\text{modèle}} - h_{\text{moyenne expe}})^2$
- ✓ la somme des carrés total  $SCT = \sum (h_{\text{expe}} - h_{\text{moyenne expe}})^2$
- ✓ si la valeur absolue de moyenne d'erreur / écart type d'erreur  $> 10^{-6}$

$$R^2 = 1 - \left( \frac{SCR}{SCT} \right)$$

- ✓ si la valeur absolue de moyenne d'erreur / écart type d'erreur  $\leq 10^{-6}$

$$R^2 = \frac{SCM}{SCT}$$

Pour visualiser l'adéquation entre les résultats de  $h$  calculés par le modèle (Eq. 80) et les  $h$  expérimentaux, nous avons tracé les valeurs de  $h$  modèle en fonction des résultats expérimentaux sur la figure (48).

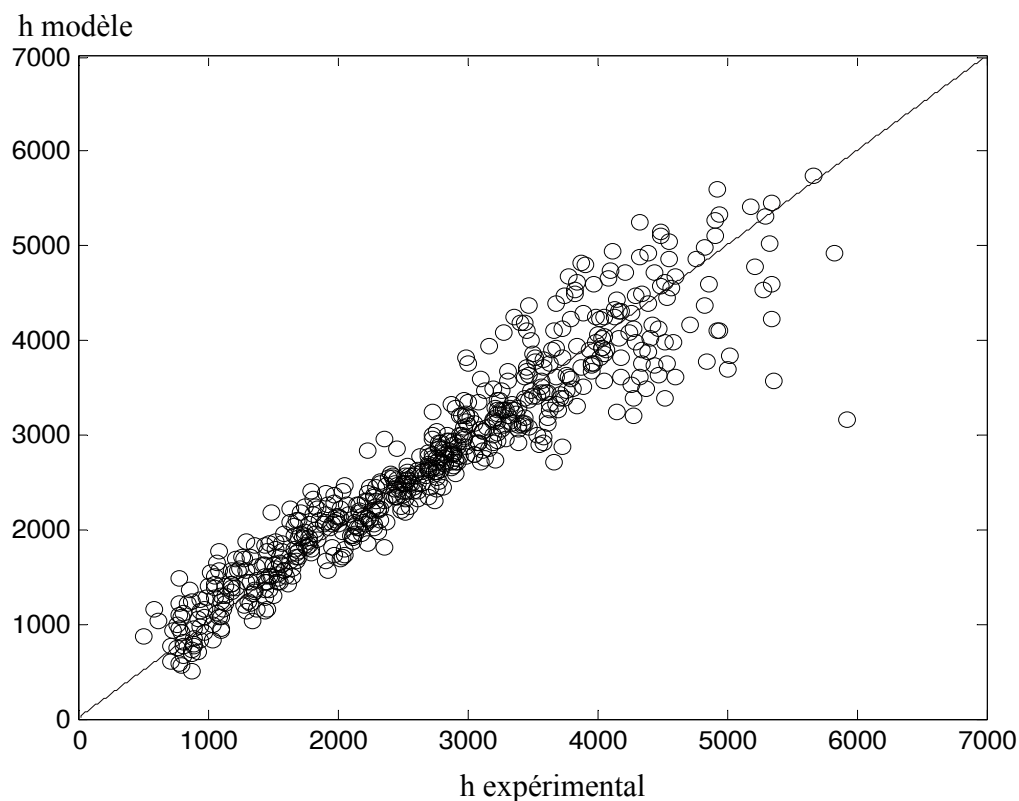


Figure 48: Comparaison entre les valeurs expérimentales et les valeurs calculées du coefficient de transfert de chaleur  $h$  ( $\text{W. m}^2. ^\circ\text{C}^{-1}$ ) en ébullition, pour des solutions de saccharose (diverses valeurs de  $\phi$  (2-80  $\text{kW.m}^{-2}$ ),  $X_{\text{MS}}$  (10-70 kg MS/ kg solution),  $\theta_L$  (70 – 105  $^\circ\text{C}$ ),  $\Gamma_L$  ( 0,21 – 0,7  $\text{l.s}^{-1}.\text{m}^{-1}$ )) en utilisant l'équation 80.

D'après les résultats représentés en figure 48, nous pouvons remarquer que la dispersion des valeurs de  $h_{\text{modèle}}$  est plus grande quand  $h$  est élevé, voulant dire ici que la concentration est petite ( $X_{\text{MS}} \leq 10\%$ ) et/ou que les valeurs de l'écart  $\Delta\theta$  sont très faibles ( $\Delta\theta < 2\text{ }^\circ\text{C}$ ). La valeur de  $h_{\text{modèle}}$  la plus déviante est la valeur de  $h$  à faible flux de chaleur 2 ( $\text{kW. m}^{-2}$ ),  $X_{\text{MS}} = 10\%$ ,  $\Gamma_L = 0,21$  ( $\text{l. s}^{-1}.\text{m}^{-1}$ ) et  $P = 701$  (mbar).

Pour mieux décrire d'éventuelles interactions entre variables, nous avons identifié le modèle polynomial plus complet suivant (15 coefficients):

$$h = a + b\phi + c X_{\text{MS}} + d\Gamma_L + e\theta_L + b_1\phi^2 + b_2\phi X_{\text{MS}} + b_3\phi\Gamma_L + b_4\phi\theta_L + c_1 X_{\text{MS}}^2 + c_2 X_{\text{MS}}\Gamma_L + c_3 X_{\text{MS}}\theta_L + d_1\Gamma_L^2 + d_2\Gamma_L\theta_L + e_1\theta_L^2$$

Les résultats de la régression sont :

$$h = 7146 + 15\phi - 6 X_{MS} - 2270\Gamma_L - 1190\theta_L - 0,1\phi^2 + 0,3\phi X_{MS} + 16\phi\Gamma_L - 14X_{MS}\Gamma_L - 0,3 X_{MS}\theta_L + 1252\Gamma_L^2 + 25\Gamma_L\theta_L + \theta_L^2 \quad [81]$$

avec  $R^2 = 0,93$ .

Pour comparer les résultats expérimentaux de  $h$  et les valeurs de  $h$  tirées de l'équation (81), nous avons tracé les valeurs de  $h$  modèle en fonction des résultats  $h$  expérimentaux, sur la figure (49).

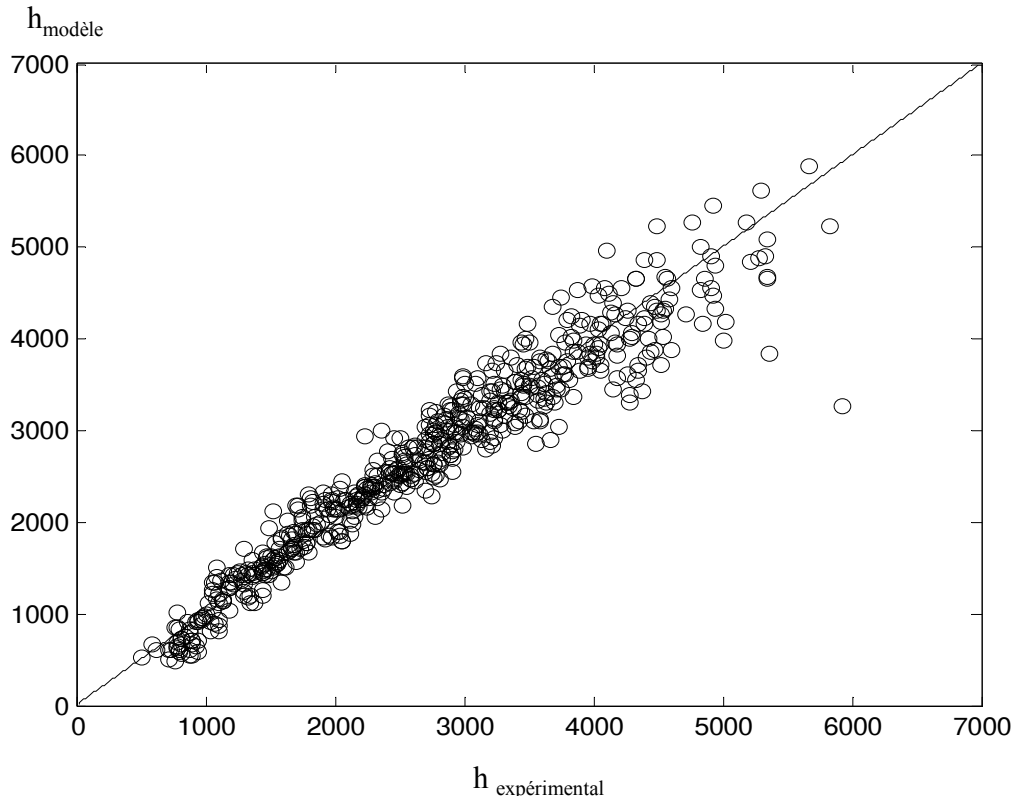


Figure 49: Comparaison entre résultats expérimentaux et les valeurs calculées du coefficient de transfert de chaleur en ébullition pour solution de saccharose (diverses valeurs de  $\phi$  (2-80 kW.m<sup>-2</sup>),  $X_{MS}$  (10-70 kg MS/ kg solution),  $\theta_L$  (70 – 105 °C),  $\Gamma_L$  ( 0,21 – 0,7 l.s<sup>-1</sup>.m<sup>-1</sup>)) en utilisant l'équation (81).

La faible augmentation de  $R^2$  entre le modèle (81) et (80), malgré l'augmentation du nombre de variables (par combinaison de variables), montre que les interactions restent faibles entre les variables de base utilisées ( $\phi$ ,  $X_{MS}$ ,  $\theta_L$ ,  $\Gamma_L$ ) et qu'on pourra négliger ces interactions. On ne peut pas affirmer si cette conclusion établie pour les jus sucrés est générale : elle pourrait être différente pour d'autres produits, ou pour des produits non-Newtoniens tels qu'étudiés plus loin.

Par ailleurs, on doit accepter que les modèles, en particulier le modèle linéaire, aient une valeur de  $R^2$  forcément inférieure à 1, dans la mesure où il reste une dispersion inévitable des résultats provenant des erreurs de mesure et de reproductibilité, et/ou éventuellement d'une cinétique de transformation du produit pendant l'essai, conduisant à une moins bonne répétabilité. Concernant le produit, et à condition d'avoir un échantillon représentatif du « vrai produit », toutes les variables liées au produit, même non explicitées comme la concentration en matières en suspension (augmentant avec la concentration en soluté), la présence d'impuretés éventuelles, etc. les évolutions des propriétés physiques en général sont bien prises en compte dans notre cas, dans les conditions du procédé. Il en est de même, s'il s'agit de la même « qualité » de la surface d'échange (matériau, rugosité, etc.). On peut donc penser que l'amélioration de  $R^2$  ne dépend pas de variables produit non décrites, mais éventuellement seulement de variables du procédé mal décrites et/ou mal maîtrisées, et surtout de l'adéquation de la forme mathématique du modèle choisi par rapport aux phénomènes observés.

Si on élimine toutes les valeurs de  $h$  obtenues à  $\Delta\theta$  très faible ( $\Delta\theta < 2^\circ \text{C}$ , domaine peu utilisé en pratique, et valeurs expérimentales moins sûres), et les valeurs de  $h$  où on observe des dépôts sur la surface de test, en fin d'essai à haute concentration de matière sèche, la dispersion entre les résultats expérimentaux et le modèle diminue, et  $R^2$  augmente légèrement. Les résultats de la régression (avec 474 essais), pour la même forme linéaire, sont présentés par l'équation (82) applicable aux jus sucrés :

$$\boxed{h = 688 + 24 \cdot \phi - 40 \cdot X_{\text{Ms}} + 926 \cdot \Gamma_L + 30 \cdot \theta_L} \quad (R^2 = 0,96) \quad [82]$$

La comparaison des valeurs de  $h$  du modèle et des résultats expérimentaux est donnée sur la figure 50.

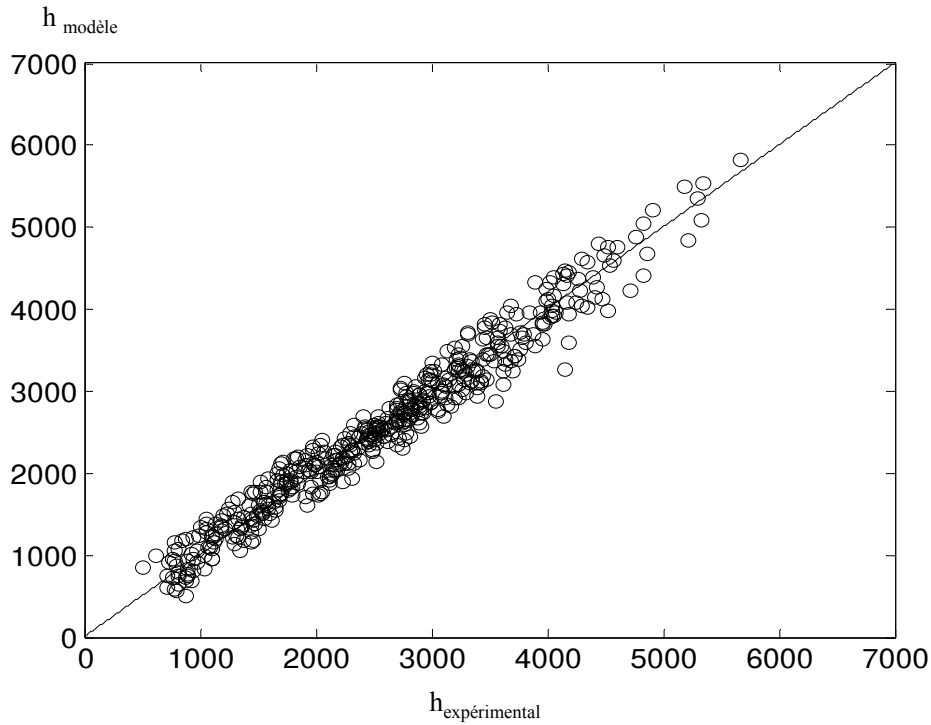


Figure 50: Comparaison entre les valeurs calculées de  $h$  en ébullition (équation 82) et les résultats expérimentaux, pour des solutions de saccharose (diverses valeurs de  $\phi$  (2-80 kW.m<sup>-2</sup>),  $X_{MS}$  (10-70 kg MS/ kg solution),  $\theta_L$  (70 – 105 °C),  $\Gamma_L$  ( 0,21 – 0,7 l.s<sup>-1</sup>.m<sup>-1</sup>)).

Le modèle linéaire pourrait encore être amélioré, sans l'alourdir, en cherchant si des variables telles que  $\phi^a$  ou  $X_{MS}^b$  ne seraient pas un peu plus explicatives que celles de l'équation (80) ou (82), le gain attendu sur  $R^2$  ne pouvant pas être important en partant d'une valeur déjà élevée.

### 3-4-3 Modèle non linéaire

La plupart des équations proposées dans la littérature sont de type « équation puissance » (power equation), du type :

$$h = a \cdot \phi^b \cdot \eta^c \cdot \Gamma_L^d \cdot \sigma^e \cdot \rho_L \dots$$

Mais rappelons que nous voulons utiliser ici la concentration de matière sèche  $X_{MS}$  et la température de liquide en ébullition  $\theta_L$ , au lieu des propriétés physiques du liquide ( $\eta$ ,  $\sigma$ ,  $\rho$ ,  $\lambda$ ,  $C_p$ )<sub>L</sub>.

Pour comparer nos résultats avec les équations en littérature, nous avons essayé un modèle non linéaire du type :

$$h = a \cdot \phi^b \cdot X_{MS}^c \cdot \Gamma_L^d \cdot \theta_L^e$$

En utilisant la même matrice de données complète que celle déjà l'utilisée pour établir l'équation (80) (soit 640 essais), nous avons trouvé par régression non linéaire l'équation suivante :

$$h = 40,7 \phi^{0,15} X_{MS}^{-0,33} \Gamma_L^{0,14} \theta_L^{1,12} \quad (R^2 = 0,72) \quad [83]$$

Pour comparer, nous avons tracé les valeurs de h tirées l'équation (83) en fonction des résultats expérimentaux, sur la figure (51).

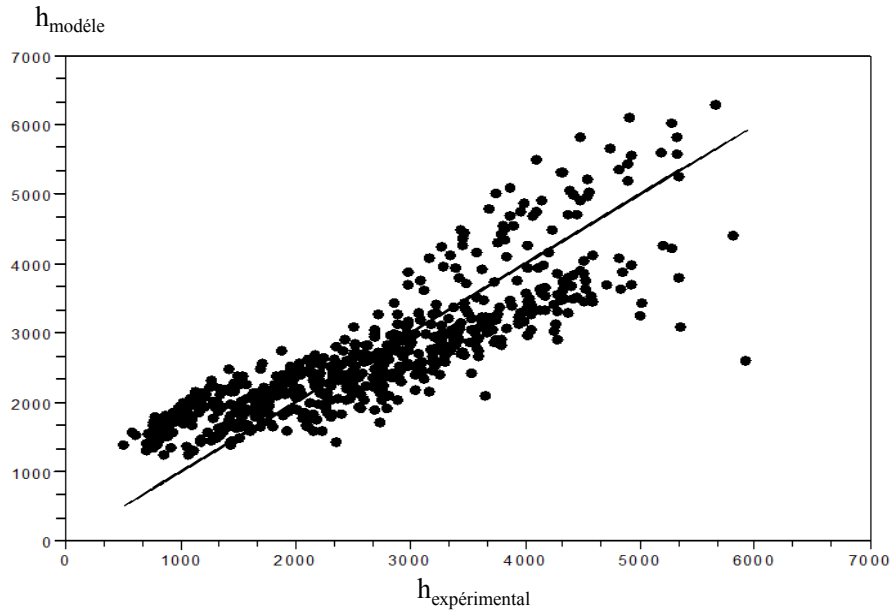


Figure 52: Comparaison entre les valeurs calculées et les résultats expérimentaux du coefficient de transfert de chaleur en ébullition pour des solutions de saccharose en utilisant l'équation (83) (diverses valeurs de  $\phi$  (2-80 kW.m<sup>-2</sup>),  $X_{MS}$  (10-70 kg MS/ kg solution),  $\theta_L$  (70 – 105 °C),  $\Gamma_L$  ( 0,21 – 0,7 l.s<sup>-1</sup>.m<sup>-1</sup>)).

En comparant les  $R^2$  des modèles 80 et 83, nous pouvons remarquer que le modèle linéaire (à 5 coefficients) est meilleur que le modèle non linéaire à 5 coefficients pour toute la matrice complète (640 essais).

Mais on a vu au Chap. I que les « équations puissances » proposées dans la littérature sont différentes selon le régime d'ébullition (nucléé ou non nucléé) dépendant du flux et de la concentration, et le régime d'écoulement. Pour cette raison, nous avons essayé de partager le plan d'expérience (tableau 7) en trois différents domaines.

### **Exploration d'améliorations du modèle non linéaire**

On cherche à répondre à la question suivante : quel serait l'intérêt, pour améliorer la prédiction de  $h$  (augmenter  $R^2$ ), de diviser la modélisation non linéaire en plusieurs domaines ?

A. - Modèle pour les solutions de saccharose diluées (10 à 30%), et en régime non nucléé :

Le domaine non nucléé correspond aux faibles flux de chaleur (2 à 10 kW. m<sup>-2</sup>), et pour les mêmes domaines des autres variables ( $\Gamma_L$  et  $\theta_L$ ) présentées au tableau (7). Les résultats de régression sont présentés dans le modèle suivant :

$$h = 33 \cdot \phi^{0,05} \cdot X_{MS}^{-0,27} \cdot \Gamma_L^{0,14} \cdot \theta_L^{1,2} \quad (R^2 = 0,85) \quad [84]$$

On confirme que, dans le domaine non-nucléé décrit par l'équation (84), l'effet du flux de chaleur sur  $h$  est négligeable, et qu'on peut penser à l'éliminer de la régression, avec peu de perte sur la qualité de la représentation, soit:

$$h = 30,6 \cdot X_{MS}^{-0,25} \cdot \Gamma_L^{0,14} \cdot \theta_L^{1,2} \quad (R^2 = 0,84) \quad [85]$$

La valeur de  $R^2$  est bien améliorée par rapport au domaine complet (équation 83). La comparaison entre les valeurs calculées de  $h$  selon l'équation (85) et les résultats expérimentaux est représentée en figure (52).

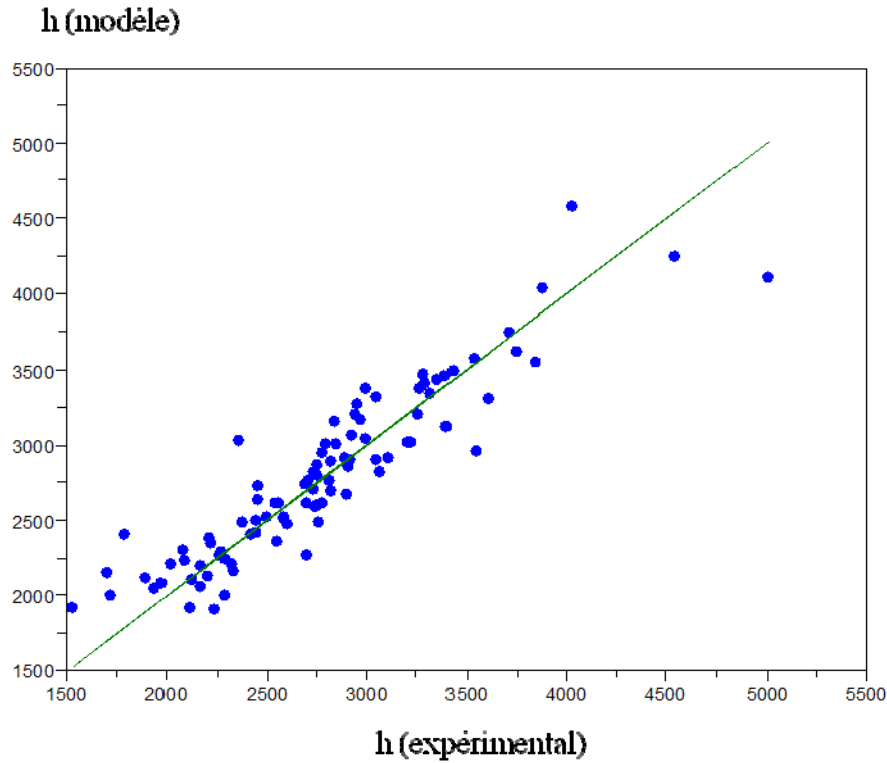


Figure (52) : Comparaison les valeurs calculées du coefficient de  $h$  en ébullition (équation 85), et les résultats expérimentaux, pour des solutions de saccharose (diverses valeurs de  $\phi$  (2-10 kW.m<sup>-2</sup>),  $X_{MS}$  (10-30 kg MS/ kg solution),  $\theta_L$  (70 – 105 °C),  $\Gamma_L$  ( 0,21 – 0,7 l.s<sup>-1</sup>.m<sup>-1</sup>))

B. Modèle pour une solution de saccharose plus concentrée ( $X_{MS}$  de 30 à 70%) et en régime nucléé ( $\phi$  de 20 à 80 kW. m<sup>-2</sup>) :

Le modèle obtenu dans ce domaine est :

$$h = 28,34 \cdot \phi^{0,34} \cdot X^{-0,53} \cdot \Gamma_L^{0,2} \cdot \theta_L^{1,24} \quad (R^2 = 0,88) \quad [86]$$

La comparaison entre le modèle et les résultats expérimentaux de  $h$ , est présenté en figure (53).

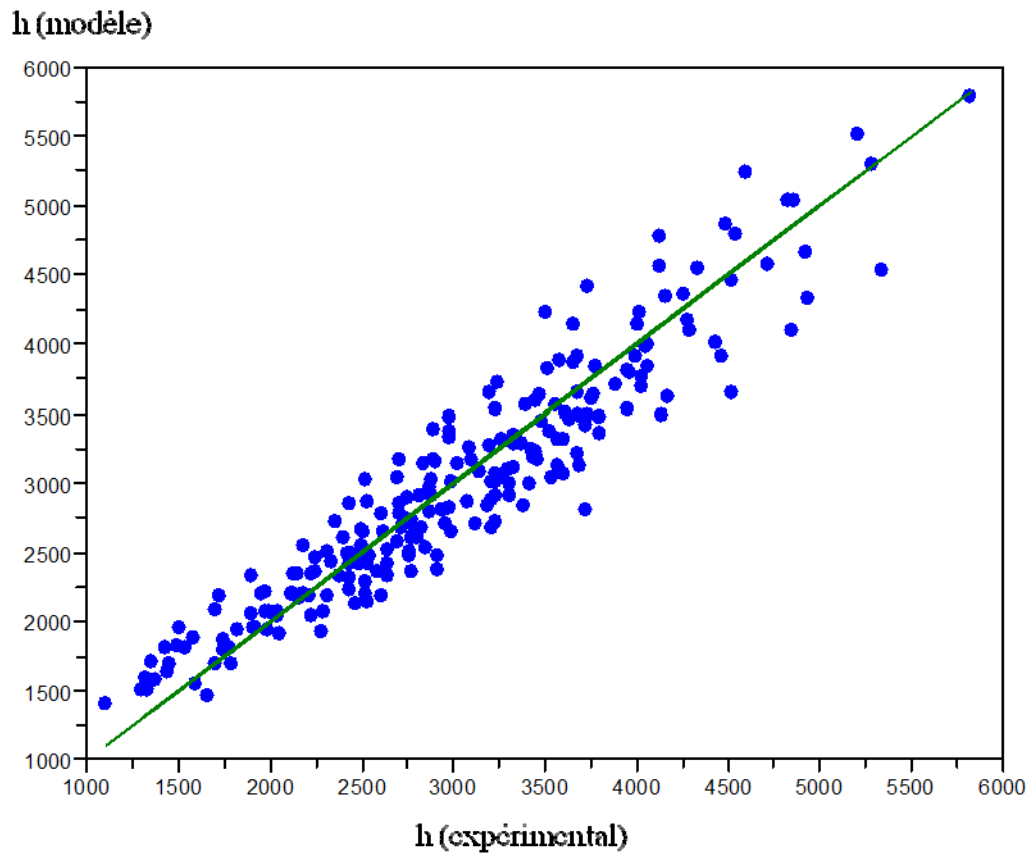


Figure 53: Comparaison entre résultats expérimentaux et les valeurs calculés du coefficient de transfert de chaleur en ébullition, pour des solutions de saccharose en utilisant l'équation (86) (diverses valeurs de  $\phi$  (20-80 kW.m<sup>-2</sup>),  $X_{MS}$  (30-70 kg MS/ kg solution),  $\theta_L$  (70 – 105 °C),  $\Gamma_L$  ( 0,21 – 0,7 l.s<sup>-1</sup>.m<sup>-1</sup>)).

C. Modèle non linéaire pour solution de saccharose très concentrée ( $X_{MS}$  de 50 à 70%) et en régime nucléé ( $\phi$  de 20 à 80 kW. m<sup>-2</sup>) :

Le modèle identifié est le suivant :

$$h = 22,96 \cdot \phi^{0,39} \cdot X^{-0,92} \cdot \Gamma_L^{0,17} \cdot \theta_L^{1,6} \quad (R^2 = 0,93) \quad [87]$$

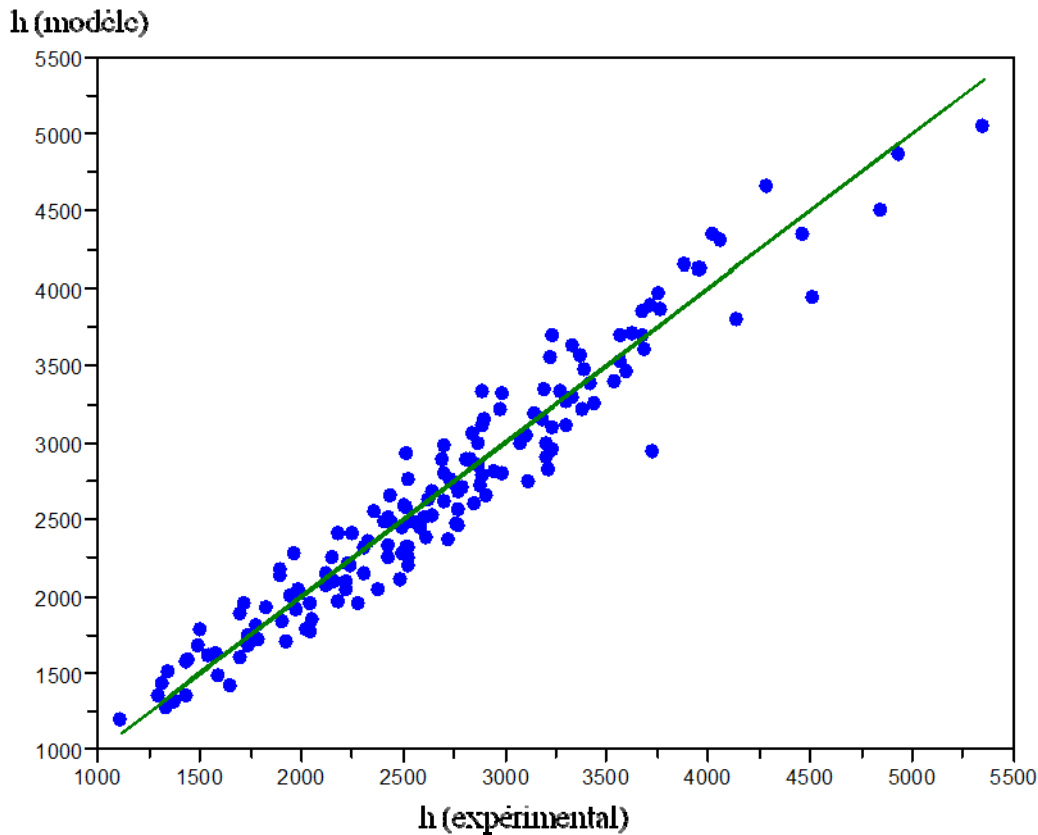


Figure 54: Comparaison entre les valeurs calculées de  $h$  en ébullition (équation 87), et les résultats expérimentaux, pour des solutions de saccharose (diverses valeurs de  $\phi$  (20-80 kW.m<sup>-2</sup>),  $X_{MS}$  (50-70 kg MS/ kg solution),  $\theta_L$  (70 – 105 °C),  $\Gamma_L$  ( 0,21 – 0,7 l.s<sup>-1</sup>.m<sup>-1</sup>)).

Il apparaît bien qu'en coupant le domaine en 3, on améliore l'adéquation de la régression non linéaire : le formalisme de l'équation (83) n'est pas aussi satisfaisant pour l'ensemble du domaine. Par exemple, en comparant les équations 85, 86 et 87, on peut remarquer que l'effet de  $\phi$  est négligeable pour un jus sucré dilué et dans un régime d'ébullition non nucléé, mais qu'il n'en est pas de même pour un jus sucré concentré et un régime d'ébullition nucléé, où l'effet de  $\phi$  est plus important ( $h = f(\phi)^{0,39}$ ).

Les variables  $X_{MS}$  (concentration de matière sèche) et  $\theta_L$  (température de liquide en ébullition) sont toujours les plus importantes sur  $h$ , dans le modèle non-linéaire comme dans le modèle linéaire. L'effet de  $\Gamma_L$  sur  $h$  reste à peu près le même dans les 3 domaines explorés

avec un faible exposant positif pouvant correspondre à un régime d'écoulement turbulent ( $Re_f > Re_{fc}$ ).

En conclusion, si on veut décrire tout le domaine de variation du tableau (7), l'équation linéaire (80) reste la meilleure représentation, surtout si on écarte les très faibles  $\Delta\theta < 2^\circ\text{C}$ , peu utilisées en général dans l'industrie.

Mais nous pouvons également utiliser un formalisme adapté à chaque domaine, délimité par les critères de concentration et de flux : soit l'équation 85 pour les jus sucrés dilués en régime non nucléé, et les équations 86 ou 87 pour les jus sucrés concentrés en régime nucléé.

### 3-5 Simplification du plan d'expérience :

Le plan d'expérience complet présenté en 640 essais, demande beaucoup de temps, et nous avons exploré la possibilité de faire un plan d'expérience réduit, en utilisant deux différentes méthodes pour réduire le nombre des essais, décrites au Chap. II – Matériel et méthodes.

#### 3-5-1 - Le plan central composite

Il convient au modèle polynomial linéaire simple, avec 26 essais seulement pour quatre variables ( $\phi$ ,  $X_{MS}$ ,  $\Delta\theta$  et  $\Gamma_L$ ). Partant de la matrice du plan central composite théorique présentée en tableau (8), nous avons sélectionné 26 essais les plus proches des points théoriques (tableau 1, annexe 5). Les résultats de la régression sont le modèle suivant :

$$h = -508,7 + 25,3 \cdot \phi - 34,3 \cdot X_{MS} + 34,6 \cdot \theta_L + 1963 \cdot \Gamma_L \quad (R^2 = 0,93) \quad [88]$$

La comparaison entre les valeurs de  $h$  calculées par le modèle (88) et les résultats expérimentaux, est présentée en figure (55).

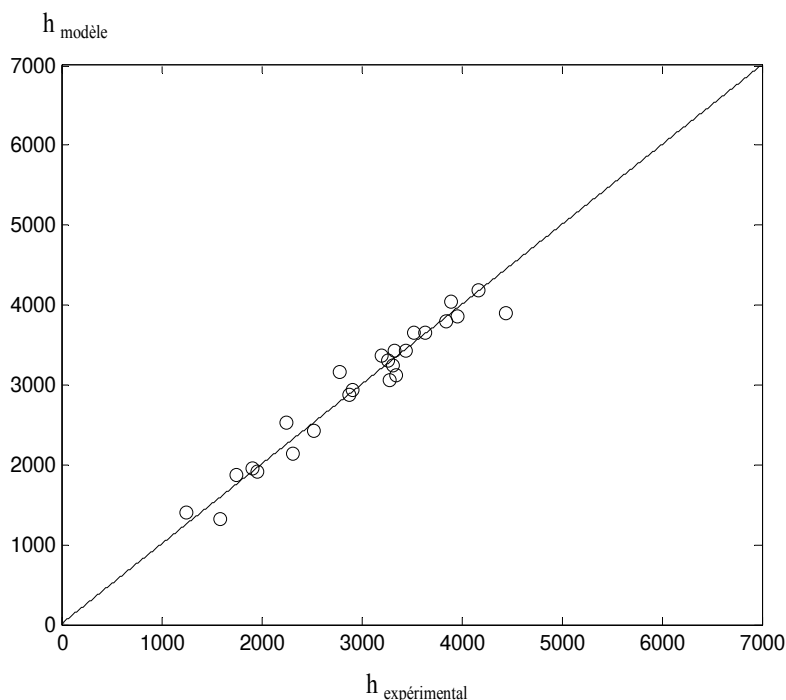


Figure 55 : Comparaison entre les valeurs calculées de  $h$  en ébullition (selon l'équation 88), et les résultats expérimentaux, pour des solutions de saccharose (diverses valeurs de  $\phi$  (2-80 kW.m<sup>-2</sup>),  $X_{MS}$  (10-70 kg MS/ kg solution),  $\theta_L$  (70 – 105 °C),  $\Gamma_L$  ( 0,21 – 0,7 l.s<sup>-1</sup>.m<sup>-1</sup>)) et le plan central composite (26 points).

En comparant les équations (88) et (82), nous pouvons remarquer que le modèle établi avec un plan d'expériences « simplifié » (plan central composite) donne un coefficient de corrélation plus faible, mais qui reste élevé ( $R^2 = 0,93$  au lieu de 0,96) alors que l'effort expérimental est lui divisé par 25. Cette procédure simplifiée semble donc suffisante pour les jus sucrés.

### 3-5-2- Le plan D-optimal

Pour les modèles non linéaires, nous avons proposé au Chap. II le plan D-optimal (algorithme de Fedorov) pour réduire le nombre d'essais à 25 essais. La matrice  $X$  des 25 essais retenus par cette procédure a été présentée au tableau 2 (annexe 5). On a sélectionné les 25 points les plus proches des points théoriques dans la matrice complète de 640 essais. Avec le modèle « fonction puissance », les résultats de l'optimisation sont les suivants :

$$h = 59,6 \cdot \phi^{0,22} \cdot X_{MS}^{-0,48} \cdot \Gamma_L^{-0,24} \cdot \theta_L^{1,14} \quad (R^2 = 0,71) \quad [89]$$

La comparaison entre le modèle et les résultats expérimentaux de  $h$  pour ce cas, est présentée en figure (56).

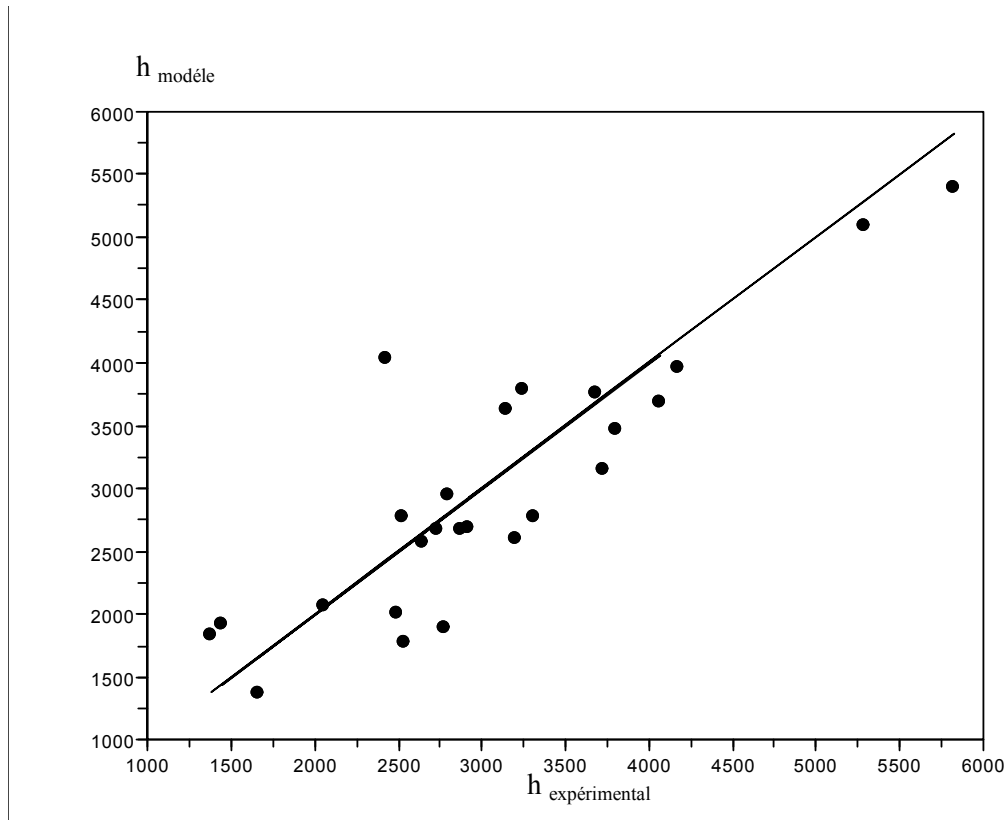


Figure 56 : Comparaison entre les valeurs de  $h$  en ébullition calculées (selon l'équation 89) et les résultats expérimentaux, pour des solutions de saccharose et le plan D- optimal (diverses valeurs de  $\phi$  (2-80 kW.m<sup>-2</sup>),  $X_{MS}$  (10-70 kg MS/ kg solution),  $\theta_L$  (70 – 105 °C),  $\Gamma_L$  ( 0,21 – 0,7 l.s<sup>-1</sup>.m<sup>-1</sup>)) (25 essais selon l'algorithme Fedorov).

En comparant les équations (83) et (89), il n'est pas anormal que la modèle « fonction puissance » tiré d'un plan d'expérience (D-optimal, en 25 essais) donne un coefficient de corrélation ( $R^2 = 0,71$ ) un peu inférieur à celui du plan complet (en 640 essais), sachant que simultanément, l'effort expérimental est divisé par 25.

Si on compare maintenant le modèle de type polynomial linéaire (équation 88) et de type fonction puissance (équation 89), le modèle polynomial linéaire apparaît meilleur pour le

même nombre de coefficients à identifier (5 coeff.), et pour sensiblement le même effort expérimental (20 ou 25 essais). Cet avantage du modèle polynomial linéaire est relativement surprenant, dans la mesure où la plupart des modèles de la littérature pour évaluer  $h$  en ébullition, sont sous forme de « fonctions puissance », et non pas linéaires. Mais il est vrai que les descripteurs mis dans notre modèle sont assez différents de ceux de la littérature.

### **3-6- Etude d'un produit non Newtonien : solution de carboxy- méthyle cellulose (CMC)**

Notre modèle de liquide non Newtonien est une solution aqueuse de CMC, qui est rhéo-fluidifiante, relativement stable à la chaleur et peu coûteuse, en vue d'explorer de façon reproductible le coefficient de transfert de chaleur  $h$  en ébullition pour ce type de liquide, et savoir si la forme du modèle devra être a priori modifiée.

#### **3-6-1- Effet du flux de chaleur $\phi$ ou $\Delta\theta$**

Pour étudier l'effet de  $\phi$  ou  $\Delta\theta$  sur le coefficient de transfert  $h$  en ébullition, nous avons effectué les essais à  $\Gamma_L = 0,56$  (kg. m<sup>-1</sup>.s<sup>-1</sup>),  $P = 311$  (mbar) fixés, et 3 concentrations différentes  $X_{MS} = 0,5$  (%), 1 et 2 (%) , comparé à l'eau pure comme référence ( $X = 0$  %).

La variation de  $h$  est représentée en fonction de la différence de la température  $\Delta\theta$  (Fig.57 B) et du flux de chaleur  $\phi$  ( Fig. 57A). Vu les faibles concentrations molaires en soluté, on peut penser que l'élévation ébulliométrique EE est négligeable pour tous les cas.

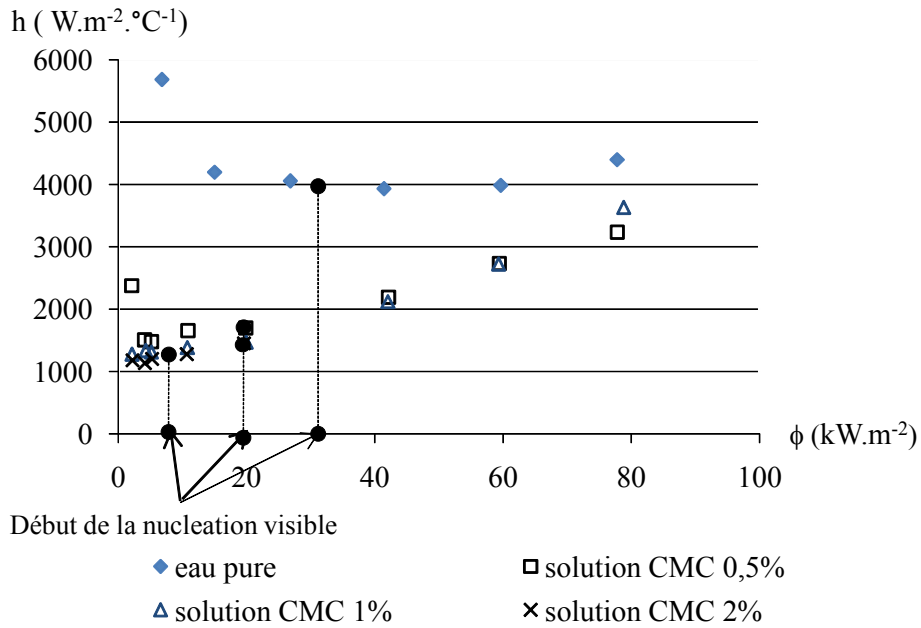


Figure (57A) : Variation de coefficient de transfert de chaleur en fonction du flux de chaleur pour la solution de CMC ( $X_{\text{MS}} = 0,5\%$  - 1% et 2%) et l'eau pure à pression  $P = 311 \text{ mbar}$ , et  $\Gamma_L = 0,56 \text{ (l. m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}\text{)}$ .

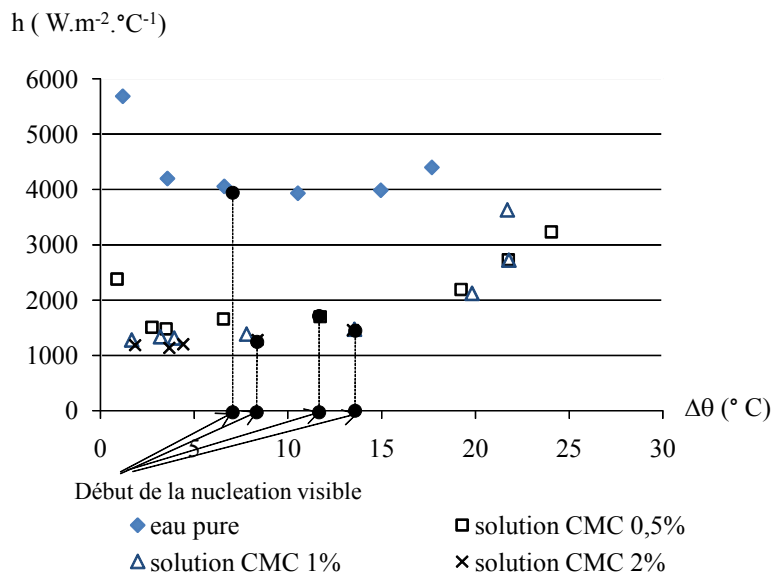


Figure (57B) : Variation du coefficient de transfert de chaleur  $h$  en fonction du  $\Delta\theta$  pour la solution de CMC ( $X_{\text{MS}} = 0,5\%$  - 1% et 2%) et l'eau pure. Pression  $P = 311 \text{ mbar}$ , et  $\Gamma_L = 0,56 \text{ (l. m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}\text{)}$ .

D'après les figure (57 A, 57B), nous pouvons remarquer que :

1.  $h$  diminue fortement pour la CMC par rapport à l'eau du fait de la forte viscosité obtenue dès les faibles concentrations.
2. les 4 points noirs en figure 57A représentent la limite visible entre le régime non nucléé et le régime nucléé. La limite de nucléation visible apparaît à des  $\phi$  plus faibles quand la concentration de la solution de CMC augmente, de même que pour les jus sucrés, mais pour des valeurs de concentration par contre complètement différentes. Pour les différentes concentrations de matière sèche (eau pure, solution de CMC  $X_{MS} = 0,5- 1- 2\%$ ) le début de la nucléation visible commence respectivement à  $\phi = 36, 20, 20$  et  $10 \text{ (kW. m}^{-2}\text{)}$ .
3. par contre, d'après le figure 57 B, il n'apparaît pas de loi claire pour le début de la nucléation visible en termes de  $\Delta\theta$  . Pour les différentes concentrations de matière sèche (eau pure, solution de CMC  $X_{MS} = 0,5- 1- 2\%$ ) le début de la nucléation visible commence respectivement à  $\Delta\theta = 6,9- 11,7- 13,5$  et  $8,4 \text{ (}^\circ\text{C)}$ .
4. à droite de la limite de nucléation visible, toutes les courbes montrent une certaine augmentation de  $h$  avec  $\Delta\theta$  ou  $\phi$  , avec des pentes plus fortes pour la CMC que pour l'eau pure, phénomène qu'on peut lier à l'agitation de nucléation.

Nous avons observé que le diamètre des bulles de vapeur pour les solutions de CMC est nettement plus grand que pour l'eau, ce qui pourrait être relié à une tension de surface plus faible, et éventuellement à la viscosité.

### 3-6-2- Effet de la concentration de matière sèche ( $X_{MS}$ )

Pour étudier l'effet de la concentration de matière sèche sur le coefficient de transfert  $h$  en ébullition, nous avons effectué les essais à  $\Gamma_L = 0,56 \text{ (l. m}^{-1}\text{.s}^{-1}\text{)}$ ,  $P = 311 \text{ (mbar)}$ , pour trois différents flux de chaleur  $\phi = 5, 20$  et  $80 \text{ (kW. m}^{-2}\text{)}$  et trois concentrations de CMC (0,5, 1 et 2%), avec l'eau pure comme référence ( $X = 0 \%$ ).

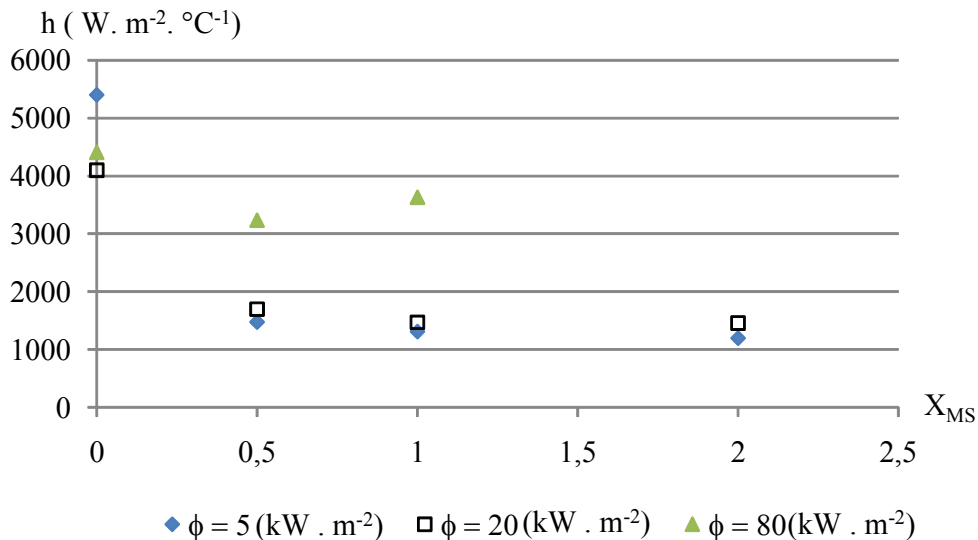


Figure (58) : Variation  $h$  en fonction de  $X_{\text{MS}}$  pour les solutions de CMC de  $X_{\text{MS}} = 0,5, 1$  et  $2\%$  et l'eau pure ( $X = 0$ ), à  $P = 311$  mbar,  $\Gamma_L = 0,56$  ( $\text{kg. m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ) et pour trois différents flux de chaleur ( $5, 20$  et  $80 \text{ kW. m}^{-2}$ ).

Sur la figure 58, nous pouvons marquer que :

- ✓ Pour les relativement faibles flux ( $\phi = 5$  et  $20 \text{ kW. m}^{-2}$ ),  $h$  diminue fortement entre l'eau pure  $X = 0\%$  et la solution de CMC  $X_{\text{MS}} = 0,5\%$ , puis plus lentement entre  $X_{\text{MS}} = 0,5\%$  et  $2\%$ , du fait d'une viscosité équivalente bien plus élevée, à même valeur de  $\dot{\gamma}$ .
- ✓ Pour des flux plus élevés ( $\phi = 80 \text{ kW. m}^{-2}$ ),  $h$  diminue moins fortement avec  $X_{\text{MS}}$  (que pour les faibles flux) entre l'eau pure et la solution de CMC  $X_{\text{MS}} = 0,5\%$ , puis reste à un niveau plus élevé qu'en faible flux. Ceci peut s'interpréter, de même que pour les jus sucrés, comme dû à la forte agitation de nucléation pour  $\phi = 80 \text{ kW. m}^{-2}$ , aux concentrations de CMC  $X_{\text{MS}} = 0,5$  et  $1\%$ .

### 3-6-3- Mesure de la viscosité et de la tension superficielle de la solution de la solution de CMC :

Pour expliquer les résultats obtenus ci-dessus, nous avons mesuré la viscosité et la tension superficielle des solutions de CMC  $X_{\text{MS}} = 0,5 - 1$  et  $2\%$  et à différentes températures dont  $70^\circ\text{C}$  (température utilisée dans l'essai pilote), et différents taux de cisaillement.

✚ **La viscosité** : le comportement rhéologie des solutions de CMC peut se représenter par une viscosité équivalente, fonction du gradient de cisaillement (et de la température)

selon la loi de puissance ( $\tau = k \dot{\gamma}^n$ ). Les résultats expérimentaux pour les trois concentrations ( $X_{MS} = 0,5 - 1 - 2\%$ ) et différentes températures (20, 30, 50 et 70 °C) sont présentés en annexe (4). Nous donnons ici la représentation de la viscosité équivalente  $\eta_{eq}$  à 70 °C des solutions de CMC, en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  en échelle logarithmique, et de l'eau pure comme référence, sur la figure (59).

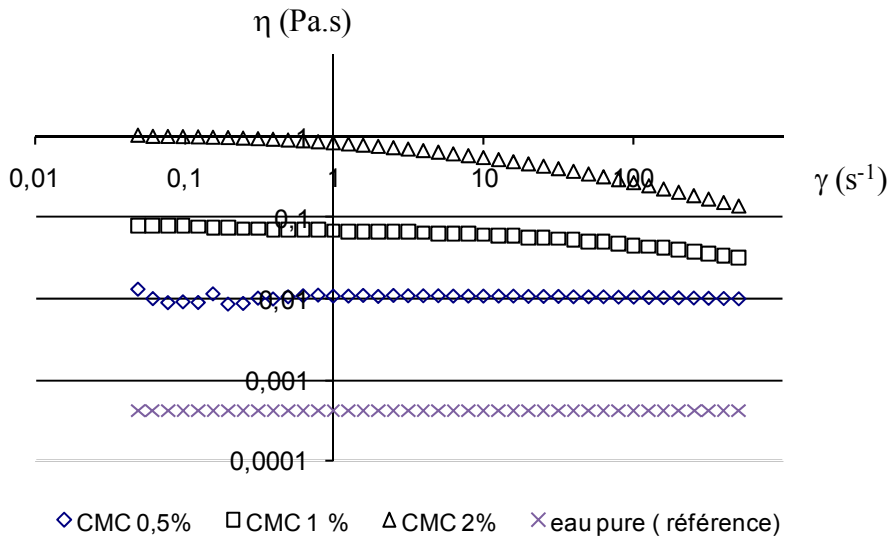


Figure (59) : Evaluation de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour les solutions de CMC  $X_{MS} = 0,5, 1, 2\%$  et l'eau pure, tous à 70 (°C).

Sur la figure (59), nous pouvons remarquer que :

- Pour  $X_{MS} = 0,5\%$ ,  $\eta_{eq}$  est indépendante du taux de cisaillement dans le domaine de  $\dot{\gamma}$  de 0,05 à 500 (s<sup>-1</sup>) à 70 °C correspondant à un comportement Newtonien ( $\eta_{eq} = 0,01$  Pa. s), mais plus loin visqueux que l'eau à 70°C.
- pour  $X_{MS} = 1\%$ , la solution a un comportement non Newtonien rhéo-fluidifiant : la viscosité  $\eta_{eq}$  diminue avec l'augmentation du taux de cisaillement, la loi de puissance pour la solution de CMC 1% à 70 °C est :

$$\tau = 0,067 \dot{\gamma}^{0,914} \quad (R^2 = 0,999) \quad [90]$$

- Pour  $X_{MS} = 2\%$ , la solution a un comportement non Newtonien rhéo-fluidifiant. Dans le domaine du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$  de 0,05 à 500 ( $s^{-1}$ ), la loi de puissance pour la solution de CMC 2 % à 70 °C est :

$$\tau = 0,743 \dot{\gamma}^{0,783} \quad (R^2 = 0,993) \quad [91]$$

- il y a un plateau quasi- Newtonien des solutions de CMC 1 et 2% à bas taux de cisaillement (par exemple la viscosité de CMC 2% reste indépendant du taux de cisaillement pour  $\dot{\gamma} < 0,12$  ( $s^{-1}$ )), sans qu'on puisse affirmer si l'écoulement dans la situation du pilote, correspond à ce domaine, ou pas.

Cette caractérisation rhéologique est utilisée plus loin, pour commenter les résultats.

**Tension superficielle** : Nous avons mesuré la tension superficielle  $\sigma_L$  (liquide /gaz) pour les trois concentrations de matière sèche des solutions de CMC ( $X = 0,5$  et 1 %) à 25 °C et à 70 °C, et à  $X = 2$  % à 70°C pendant 5 minutes. Les résultats sont présentés en figure (60), et comparés à l'eau pure ( $X_{MS} = 0$ ) à 70°C :

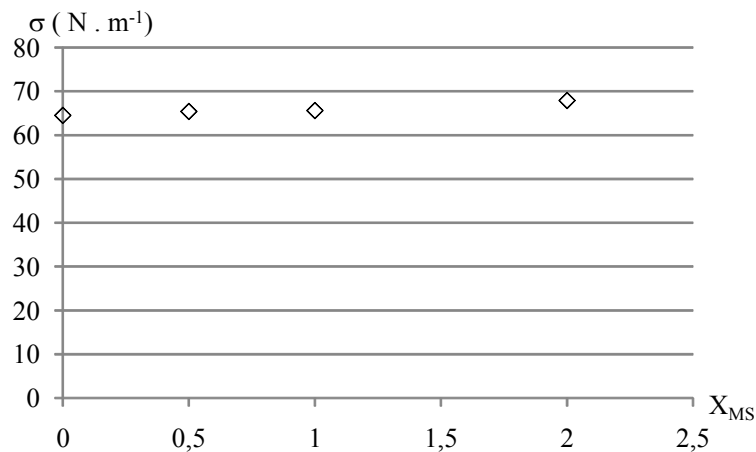


Figure (60) : variation de la tension superficielle en fonction de concentration de matière sèche pour des solutions de CMC  $X_{MS} = 0,5$  %, 1% et 2% et comparés avec l'eau pure à 70 °C.

Sur la figure (61), nous pouvons remarquer que les tensions superficielles des quatre fluides sont comparables, et peu dépendantes de  $X_{MS}$ .

La tension superficielle de solution de CMC pouvant varier dans le temps [Rosilio et al. 2000], nous avons aussi mesuré la tension superficielle pour les deux solutions de CMC 0,5 et 1% à 25° C pendant 5 h. La cinétique de la tension superficielle pour les deux solutions de CMC comparées avec l'eau pure à 25 °C est présentée en figure (61).

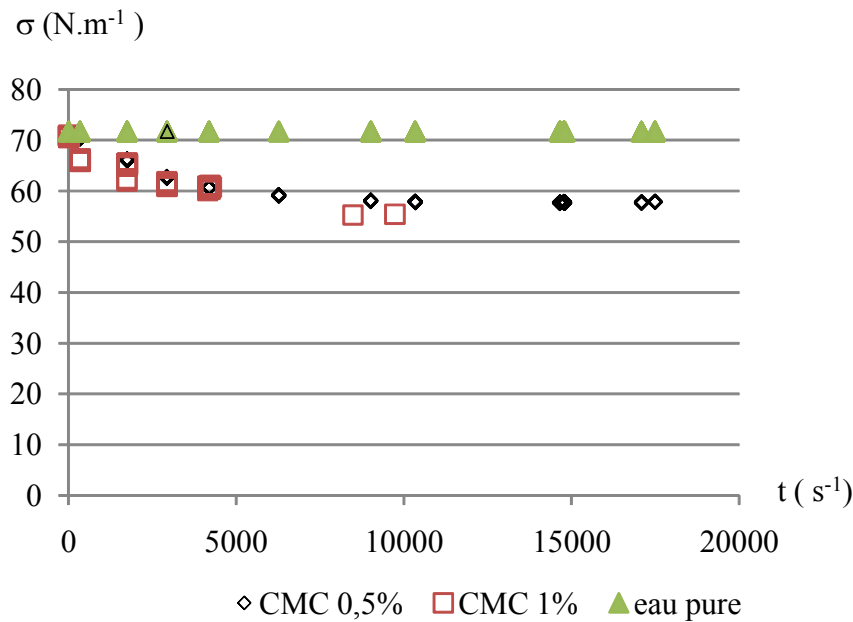


Figure (61) : évaluation de la tension superficielle, des solutions de CMC,  $X_{MS} = 0,5 \%$  et  $1\%$  comparée avec l'eau pure, en fonction de temps à 25 °C.

D'après les résultats en figure (61), il semble que la tension superficielle des solutions de CMC  $X_{MS} = 0,5$  et  $1\%$  diminue légèrement avec le temps, et que la tension superficielle pour l'eau pure reste constante.

D'après ces caractérisations des solutions de CMC, nous pouvons faire les remarques suivantes, concernant le coefficient de transfert en ébullition  $h$ :

- ✓ Pour la solution de CMC  $X_{MS} = 0,5 \%$  : elle a un comportement rhéologique Newtonien à 70 °C, c'est-à-dire que sa viscosité est indépendante du taux de cisaillement ( $\eta = 0,01$  Pa. s à 70 °C). Or, d'après la figure (57 A), la valeur de  $h$  en fonction de  $\phi$  est très en dessous de celle de l'eau pure, ce qui peut s'interpréter comme l'effet d'une viscosité 25 fois plus élevée pour la CMC que pour l'eau. Ensuite,  $h$  augmente plus vite avec  $\phi$  que pour l'eau pure, après le démarrage de la

nucléation. Nous avons aussi observé que les bulles de vapeur deviennent plus grandes pour la solution de CMC 0,5% que pour l'eau, alors que  $\sigma$  est très voisin. La viscosité semble donc un paramètre cinétique de la croissance et du détachement des bulles, qui fixe la taille des bulles au détachement (et pas seulement  $\sigma$  et  $\omega$ , selon l'équilibre statique décrit en bibliographie).

- Pour la solution CMC à  $X = 2\%$ , la viscosité à faible gradient de cisaillement (par exemple à  $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$  la viscosité apparent = 0,56 Pa.s) est beaucoup plus élevée que celle d'une solution de saccharose à  $X = 70\%$  à  $70^\circ\text{C}$  ( $\eta_L = 0,025 \text{ Pa.s}$ ), et avec des tensions superficielles assez voisines. Pour expliquer que les coefficients de transfert sont voisins à  $\phi = 20 \text{ (kW. m}^{-2}\text{)}$  par l'effet rhéo-fluidifiant, il faudrait invoquer un taux de cisaillement très élevé ( $\dot{\gamma} > 1000 \text{ s}^{-1}$ ), ce qui pourrait s'interpréter comme l'effet de l'agitation de nucléation. Mais nous avons besoin plus des études sur les solutions de CMC et/ou les liquides non-Newtonien pour bien expliquer l'effet de différents paramétrés ( $X_{MS}$ ,  $\phi$ , etc.) sur  $h$ .

#### 3-6-4-Effet du débit massique par unité de périmètre de tube ( $\Gamma_L$ ) :

Pour décrire l'effet de  $\Gamma_L$  sur  $h$  pour les produits non Newtoniens, nous avons mesuré  $h$  en ébullition en fonction de  $\Gamma_L$ , pour des solutions de CMC à 2 concentrations ( $X_{MS} = 0,5$  et  $1\%$ ) à  $P = 311 \text{ mbar}$  et un flux de chaleur constant  $\phi = 20 \text{ kW. m}^{-2}$ .

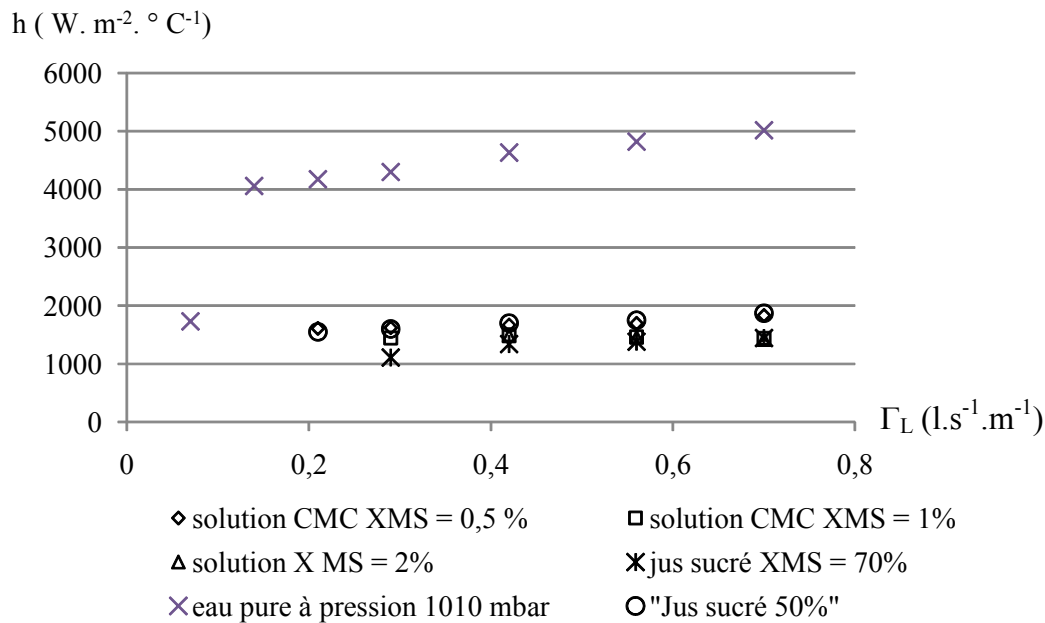


Figure (62) : variation de  $h$  en fonction  $\Gamma_L$  pour des solutions de CMC,  $X_{MS} = (0,5- 1- 2 \%)$ , comparées avec jus sucré  $X_{MS} = 70 \%$ ,  $\phi = 20$  (kW. m<sup>-2</sup>) et  $P = 311$  mbar.

Les résultats présentés en figure (62) montrent que :

- Pour  $X_{MS} = 0,5 \%$  de CMC, le coefficient de transfert de chaleur augmente légèrement pour  $\Gamma_L$  entre 0,2 et 0,7 (l.m<sup>-1</sup>.s<sup>-1</sup>). C'est un comportement comparable aux jus sucrés  $X_{MS} = 70\%$ , avec des valeurs de  $h$  assez voisines (à mêmes  $\phi$ ,  $\Gamma_L$  et pression  $P$ ), bien que la viscosité de jus sucré  $X = 70\%$  soit 2,5 fois plus élevée que la viscosité de CMC à  $X = 0,5\%$  (respectivement 0,025 et 0,01 Pa. s) la CMC étant Newtonienne à cette concentration jusqu'à des  $\dot{\gamma}$  élevées. Cette superposition entre les courbes de CMC 0,5% et jus sucré 70% (figure 62) peut signifier qu'il existe un autre effet que la viscosité pour expliquer la valeur de  $h$  ( $\sigma_L$ ,  $\sigma_{L-S}$ , MES, etc. ?), ce qui reste une question.
- Pour  $X_{MS} = 1\%$ ,  $h$  est quasi constant quand  $\Gamma_L$  augmente entre 0,4 et 0,7 (l.s<sup>-1</sup>.m<sup>-1</sup>), avec des valeurs un peu plus élevées que pour le jus sucré à 70 %  $X_{MS}$ .

### 3-7 Modélisation d'un fluide non-Newtonien (CMC)

Selon la méthode précédente, nous avons proposé un plan d'expériences pour représenter  $h$  en fonction de trois variables ( $\phi$ ,  $X_{MS}$  et  $\Gamma_L$ ),  $\theta_L$  étant maintenu constant dans ce cas, faute de temps. Le domaine des variables est présenté en tableau (11). (64 essais)

| Variables                                                                                                | Domaine d'étude                          |
|----------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------|
| $\Gamma_L (l. m^{-1}. s^{-1})$                                                                           | 0,29- 0,42- 0,56- 0,7                    |
| $\phi (kW. m^{-2})$ (imposé) ou<br>$\Delta\theta$ , Température différence ( $^{\circ}C$ )<br>(Constaté) | 2- 4 - 5- 10- 20- 40- 60- 80<br>0,5 à 25 |
| $P_{sat}$ (mbar)                                                                                         | 311                                      |
| $X_{MS}$ (%)                                                                                             | 1- 2                                     |

Tableau 11: les domaines de variables expérimentales pour les solutions de CMC.

#### 3-7-1 Modèle polynomial linéaire : application à la CMC.

D'abord, nous avons identifié un modèle linéaire simple de la forme :

$$h = a + b \cdot \phi + c \cdot X_{MS} + d \cdot \Gamma_L$$

L'analyse des résultats avec la régression pour la solution de CMC non Newtonien (1et 2%) et dans tous les domaines d'étude (Tableau 11) sont présentés dans le modèle suivant:

$$h = 1232 + 31 \cdot \phi - 72 \cdot X_{MS} - 223 \cdot \Gamma_L \quad (R^2 = 0,97) \quad (92)$$

La comparaison entre le modèle et les résultats expérimentaux de  $h$ , dans ce cas, est présentée en figure (63).

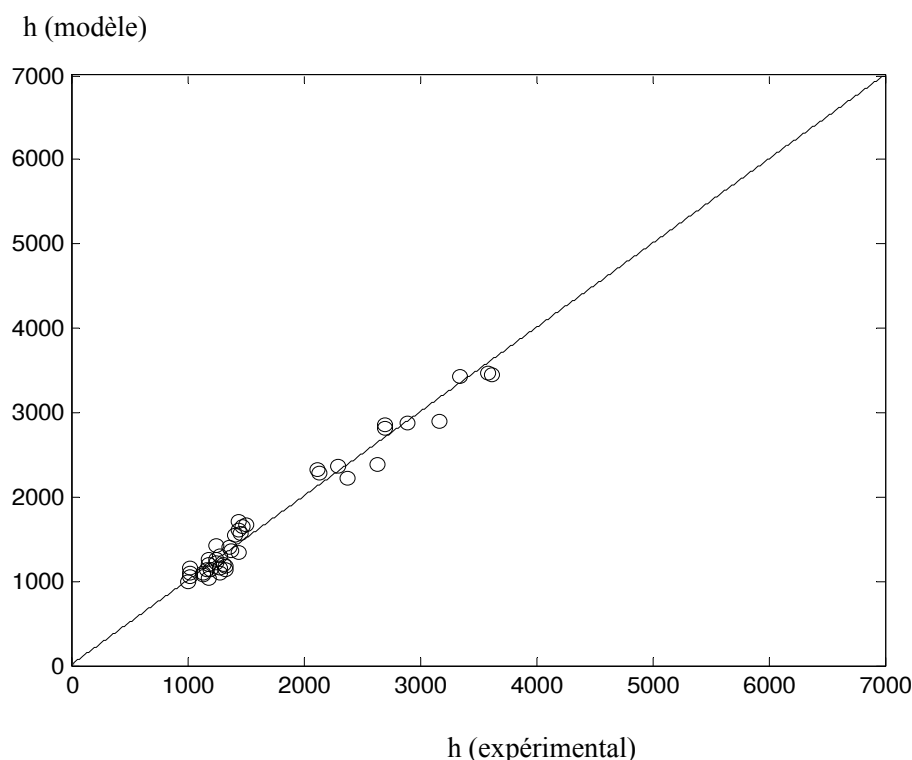


Figure 63: Comparaison entre résultats expérimentaux et les valeurs calculés du coefficient de transfert de chaleur en ébullition pour solution de CMC non Newtonien (diverses valeurs de  $\phi$  (2-80 kW.m<sup>-2</sup>),  $X_{MS}$  (1-2 kg MS/ kg solution),  $\theta_L$  (70 °),  $\Gamma_L$  ( 0,29 – 0,7 l.s<sup>-1</sup>.m<sup>-1</sup>)) en utilisant l'équation (92).

La comparaison entre le cas Newtonien et non-Newtonien est faite plus loin.

### 3-7-2 Modèle non linéaire : application à la CMC (non Newtonien)

Couramment les équations proposées dans la littérature sont de type « équations puissances » (power equation), sachant que nous utilisons ici la concentration de matière sèche et la température de liquide en ébullition, au lieu des propriétés physiques du liquide telles que ( $\eta$ ,  $\rho$ ,  $\lambda$ ,  $C_p$ ,  $\sigma$ , ...).

Pour comparer avec les équations de la littérature, nous avons essayé un modèle non linéaire du type ( $h = a \cdot \phi^b \cdot X_{MS}^c \cdot \Gamma_L^d$ ) à  $\theta_L$  constant. La régression non linéaire a conduit à l'équation suivante :

$$h = 630 \cdot \phi^{0,36} \cdot X_{MS}^{-0,15} \cdot \Gamma_L^{-0,05} \quad (R^2 = 0,88) \quad (93)$$

La comparaison entre les valeurs calculées de  $h$  en utilisant l'équation (93), et les résultats expérimentaux, est représentée en figure (64).

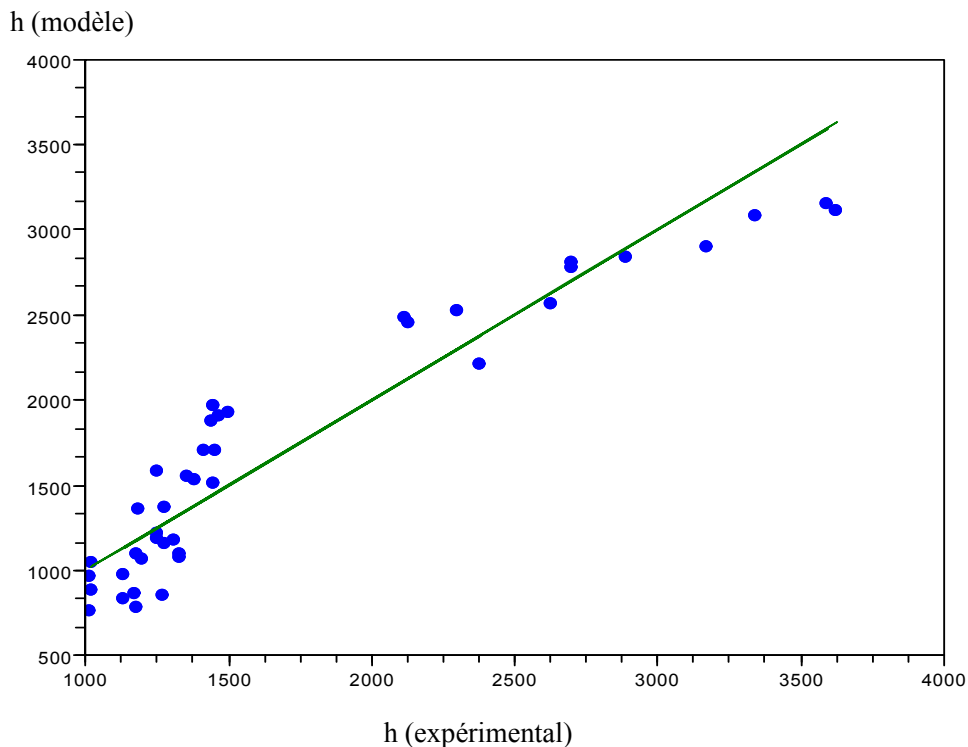


Figure 64 : Comparaison entre résultats expérimentaux et les valeurs calculées du coefficient de transfert de chaleur en ébullition pour solution de CMC non Newtonien (diverses valeurs de  $\phi$  (2-80 kW.m<sup>-2</sup>),  $X_{MS}$  (1-2 kg MS/ kg solution),  $\theta_L$  (70 °C),  $\Gamma_L$  ( 0,29 – 0,7 l.s<sup>-1</sup>.m<sup>-1</sup>)) en utilisant l'équation (93).

D'après les résultats ci-dessus pour une solution non-Newtonienne rhéofluidifiante (CMC), nous pouvons remarquer que :

- L'effet principal sur  $h$  vient du flux de chaleur ( $\phi$ ) ou de la différence de température ( $\Delta\theta$ ) pour toutes les concentrations étudiées de CMC 1 et 2 %, avec un exposant notable  $h = f(\phi^{0,36})$ . Cet effet est comparable à celui de  $\phi$  pour jus sucré concentré  $X_{MS} > 30\%$  en régime d'ébullition nucléé. Peut être pouvons-nous expliquer la petite augmentation de l'exposant de  $\phi$  pour un produit non Newtonien (CMC), par l'augmentation de taux de cisaillement lié à la nucléation avec  $\phi$  qui diminue la viscosité de la solution de CMC, et augmente  $h$ .

- L'effet de la concentration de matière sèche ( $X_{MS}$ ) reste faible sur  $h$ , avec un exposant négatif  $h = f(X_{MS}^{-0,15})$  pour les solutions de CMC à  $X_{MS} = 1$  et 2% à 70 °C). La sensibilité de  $h$  à  $X_{MS}$  est plus faible pour les solutions de CMC non-Newtoniennes que pour les jus sucrés (Newtoniennes), peut être à cause de la variation de  $\eta$  en fonction du taux de cisaillement  $\dot{\gamma}$ , à température  $\theta_L$  et flux identiques.
- L'effet du débit volumique par unité de périmètre de tube ( $\Gamma_L$ ) sur  $h$  est quasi nul, sachant qu'on est au dessus de  $\Gamma_{cri}$ . Le nombre de Reynolds en film pour la solution de CMC, calculé avec les valeurs de  $\dot{\gamma}$  de 0,5 à 500 ( $s^{-1}$ ), est  $Re_f \leq 73$  pour  $X_{MS} = 1\%$ , et  $Re_f \leq 28$  pour  $X_{MS} = 2\%$ , dans tout le domaine expérimental, laissant supposer que les solutions de CMC (1 et 2%) sont toujours en régime laminaire. Classiquement en régime laminaire et non nucléé,  $h$  devrait diminuer avec l'augmentation de  $\Gamma_L$ , ce qui n'est pas constaté, mais rappelons que le taux de cisaillement au cours de nos essais n'est pas connu.
- Le modèle polynomial linéaire est mieux adapté que la modèle « puissance » pour tout le domaine présenté au tableau 2 (avec la CMC comme avec le sucre).
- La raison pour laquelle les  $h$  des solutions de CMC 0,5-1 et 2% sont comparables à ceux des jus sucrés à  $X_{MS} = 50$  ou 70% , alors que leur viscosité est nettement plus élevée à faible  $\dot{\gamma}$ , suppose un taux de cisaillement élevé ( $\dot{\gamma} > 1000 s^{-1}$  ?), par exemple du fait que la nucléation ou que le diamètre de la bulle de vapeur traversant le film de solution de CMC est plus grand que pour l'eau ou les jus sucrés, qui augmentent l'agitation de nucléation et le transfert de chaleur, sans oublier l'effet d'autres paramètres sur  $h$  notamment les impuretés les matières en suspension dans le liquide la collaboration liquide/paroi pour chaque liquide étudié.

## CONCLUSION GENERALE

La prévision du coefficient de transfert de chaleur côté liquide en ébullition ( $h$ ) est un point-clé quand on veut concevoir un évaporateur, en situation d'ingénierie. La valeur de  $h$  propre à chaque effet dépend à la fois de paramètres attachés au procédé (type d'évaporateur, pression de fonctionnement, écart de température  $\Delta\theta$  disponible, etc.) et de paramètres attachés au produit à concentrer, à ses propriétés thermo-physiques (viscosité fonction de la concentration et de la température, tension de surface, etc.). Une difficulté supplémentaire liée à l'ébullition vient de ce que, selon le régime d'ébullition constaté (nucléée ou en ébullition), et selon éventuellement le régime d'écoulement (laminaire ou turbulent – en fonction du nombre de Reynolds en film  $Re_f$ ), le comportement d'ébullition change, correspondant à des formes de loi différentes pour prédire la valeur de  $h$ . Enfin les comportements rhéologiques non Newtoniens sont une autre source d'incertitude, sachant que le taux de cisaillement local dans le film est inconnu, provenant à la fois de l'écoulement et de l'agitation de nucléation.

Nous nous sommes limités ici au cas des évaporateurs « à flot tombant », très utilisés dans les industries alimentaires, pour concentrer le lait et les produits laitiers, les jus sucrés, les jus de fruits et légumes, ... En effet, ils permettent d'obtenir un coefficient de transfert de chaleur ( $h$ ) relativement élevé pour un faible  $\Delta\theta$ , plus faible qu'avec les évaporateurs « à grimpage », ou à surface d'échange immergée, permettant ainsi d'abaisser la température de traitement, et de limiter le temps de séjour du produit dans l'appareil.

La première partie de la thèse est une analyse bibliographique, qui nous a permis de comparer les nombreuses formules proposées dans la littérature, pour estimer  $h$  en ébullition (6 pour l'ébullition en vase, 10 pour l'évaporation à flot tombant). Selon la bibliographie, il apparaît que, pour toutes les situations correspondant à un régime d'ébullition *non-nucléée* dans l'évaporateur à flot tombant, pour un produit donné (dont sa concentration) et des conditions fixées (pression,  $\Gamma$ ),  $h$  est indépendant de  $\phi$  ou  $\Delta\theta$ , que le régime d'écoulement soit laminaire ou turbulent. Dans l'étude réalisée par Prost et al, 2006 pour estimer  $h$  dans évaporateur à flot tombant. La valeur de  $h$  dépend alors surtout des paramètres d'écoulement, donc de la viscosité et du débit spécifique  $\Gamma_L$ . Par contre, dans le cas du régime d'ébullition *nucléée* dans l'évaporateur à flot tombant, certains auteurs décrivent une augmentation de  $h$  avec  $\phi$  ou  $\Delta\theta$  (Krupiczka et al, 2000 pour l'eau pure, Bouman et al pour le lait, ...).

Mais l'incertitude porte sur la prévision de la transition entre les deux régimes d'ébullition (non-nucléé et nucléé), qui est plutôt constatée que prédite, et qui peut varier beaucoup en termes de flux ou de  $\Delta\theta$  : par exemple  $\Delta\theta \approx 5\text{ °C}$  pour l'eau pure dans un évaporateur à flot tombant, et seulement  $\Delta\theta \approx 0,5\text{ °C}$  pour le lait (Bouman et al), d'où une incertitude sur la loi d'ébullition à utiliser, qui se reporte sur la valeur de  $h$  prédite.

Ajoutons que, malgré leur apparence générale, fondée sur des nombres sans dimension et sur des propriétés physiques mesurables, les équations existantes dans littérature pour estimer  $h$  en ébullition ne semblent pas pouvoir être utilisées pour d'autres liquides que ceux pour lesquels elles ont été établies. En effet, nous avons montré la grande dispersion entre formules, lorsqu'on utilise les mêmes valeurs des paramètres thermo-physiques ( $h$  pouvant varier dans un rapport de 1 à 40 en ébullition nucléée en vase entre formules), ce qui montre qu'elles n'ont pas de caractère général, surtout à forte concentration (viscosité), et que leur valeur prédictive est médiocre pour un autre produit, ou des conditions autres que celles utilisées pour les établir. Donc, même si on mesurait les propriétés thermo-physiques descriptives du liquide à traiter ( $\eta$ ,  $\rho$ ,  $\lambda$  et  $C_p$ , ...), ce qui est déjà difficile dans les conditions du procédé, la prédiction de  $h$  reste peu fiable sur la base de ces formules. Pour résumer, les formules existantes ne décrivent pas la généralité ou la complexité du problème, et malgré leur apparence, elles n'ont pas la valeur prédictive générale des équations de transfert sans ébullition (du type Dittus-Boelter par exemple).

A partir de cette analyse, notre travail a visé les objectifs suivants :

- définir une méthode fiable et économique pour évaluer le coefficient de transfert de chaleur ( $h$ ) coté liquide en ébullition, sans avoir besoin de mesurer au préalable les propriétés thermo-physiques des produits, sachant que ces « descripteurs » du produit ne suffisent pas avec les formules actuelles, à prédire  $h$  en ébullition de façon fiable. Mais nous gardons l'idée qu'une formule est attachée à un produit et un type d'évaporateur, constituant en quelque sorte « sa carte d'identité » en ébullition dans une base de données. On renonce donc à décrire la complexité des paramètres d'influence, ce qui est déjà la réalité de fait mais « masquée » dans les formules actuelles de la littérature.
- si possible, observer et définir les conditions de la transition entre le régime d'ébullition non-nucléée et nucléée pour chaque liquide, et en fonction des conditions étudiées ;

- étudier les effets des paramètres utiles ( $\phi$ ,  $\Gamma_L$ ,  $\theta_L$ ,  $X_{MS}$ ) sur  $h$  pour un liquide Newtonien, et les différences éventuelles quand il s'agit d'un liquide non-Newtonien ;
- établir les équations du type  $h = f(\phi, \Gamma_L, \theta_L, X_{MS})$  modélisant le comportement pour chaque liquide étudié, et pouvant servir de « base de données produit » en calcul automatique, pour l'ingénierie, quand tous ces paramètres varient (dans un évaporateur multiple effet) ;
- explorer la possibilité de simplifier le plan d'expérience pour décrire le comportement d'un produit donné, dans le sens de moins d'essais (plan d'expérience optimisé), tout en restant suffisamment représentatif du domaine étudié (collaboration industrielle).

Dans cet objectif, la deuxième partie de la présente thèse a été de concevoir et construire un pilote assez représentatif de l'évaporateur à flot tombant, permettant la mesure expérimentale du coefficient de transfert de chaleur  $h$  pour les fluides alimentaires, en ébullition dans des conditions connues et reproductibles ( $\phi$ ,  $\Gamma_L$ ,  $X_{MS}$  et  $P$ ), et pouvant intégrer l'effet du régime d'écoulement en fonction de la rhéologie du produit dans les conditions du procédé, du régime d'ébullition, ainsi que de la variabilité éventuelle du produit (pour un jus de fruit : variété, maturité, etc.).

Le pilote répondant à ces objectifs a été conçu, construit et instrumenté dans les ateliers de l'INRA-MASSY et Agroparistech-MASSY, au sein de l'UMR 1145 – (Génie Alimentaire), sur les bases suivantes :

- Le liquide ruisselle à l'extérieur de la surface cylindrique, en utilisant un distributeur formant un film d'épaisseur uniforme sur le périmètre du cylindre
- Les propriétés de la surface de chauffe sont fixées (acier inoxydable 316 L poli), mais on peut en changer.
- La concentration en matière sèche  $X_{MS}$  reste quasi constante le long du tube, et dans le temps. Le liquide arrive à sa température d'ébullition, de sorte que sa température d'ébullition ( $\theta_L$ ) reste constante le long du tube.
- Le tube de test est chauffé par l'électricité, en fonctionnant à puissance imposée  $\dot{Q}$ , donc à flux  $\phi$  imposé, et on attend le régime stationnaire. Du fait du préchauffage amont, toute la chaleur apportée à la surface correspond bien à un transfert par ébullition, et non pas au réchauffage préalable du produit.

- Nous pouvons observer, grâce à l'enceinte principale du pilote en verre, le début visible de l'ébullition nucléée, la qualité du mouillage de la surface de test ou l'apparition de « taches sèches », selon la valeur de  $\Gamma$  et/ou d'autres observations utiles (moussage).
- Le domaine accessible actuel est pour le flux de chaleur de 0 à 85 kW. m<sup>-2</sup>, et pour le débit de fluide de 15 l/h à 200 l/h, soit  $\Gamma_L$  entre 0,04 et 0,7 l. s<sup>-1</sup>. m<sup>-1</sup>, et pour P de 350 à 1013 mbar.

La troisième partie a été d'étudier expérimentalement chaque paramètre séparément dans un plan d'expérience complet (pour un produit donné), permettant d'explorer l'effet de chaque facteur ( $\phi$ ,  $X_{MS}$ ,  $\theta_L$ ,  $\Gamma_L$ ) sur  $h$ , dans le cas de l'eau pure ( $X = 0$ ) pris comme référence, et de solutions de saccharose à différentes concentrations ( $X_{MS} = 10, 30, 50$  et 70%) comme modèle de produit Newtonien. La transition de régime non nucléé au régime nucléé a été observée, et varie en fonction du flux de chaleur  $\phi$ , à  $\Gamma_L$  et  $\theta_L$  constants, et de la concentration  $X_{MS}$  : le début de nucléation visible apparaît à respectivement  $\phi = 36, 34, 18, 11$  et 5,7 kW.m<sup>-2</sup>, ou à  $\Delta\theta = 7 - 6,8 - 5,5 - 4,2 - 4$  °C, pour  $X_{MS} = 0, 10, 30, 50, 70\%$ , pour les solutions de saccharose en flot tombant.

Dans le domaine nucléé, la sensibilité de  $h$  à  $\phi$  ou  $\Delta\theta$  n'est pas négligeable, et la pente augmente avec la concentration, pour  $X_{MS} \geq 30\%$  et des flux assez élevés pour imposer la nucléation. A l'occasion des mesures de tension superficielle des solutions, nous avons observé la présence de matières en suspension (impuretés insolubles), en concentration croissante avec la concentration en saccharose, pouvant expliquer que la nucléation commence à plus bas  $\Delta\theta$  en milieu concentré, alors que la tension superficielle est seulement en légère diminution.

Les paramètres essentiels faisant varier  $h$  sont  $X_{MS}$  et de  $\theta_L$ , qui semblent se ramener à l'effet de la viscosité, dans la mesure où toutes les valeurs de  $h$  se ramènent à une courbe unique  $h = f(\eta)$ , à  $\phi$  et  $\Gamma_L$  fixés. Mais, bien que l'effet de la viscosité sur  $h$  soit en général représenté par une « loi puissance » ( $h = a \eta^b$ ) avec un exposant négatif, il apparaît que nous pourrions avec les variables choisies  $X_{MS}$  et  $\theta_L$  utiliser plutôt une loi linéaire, de la forme ( $h = a - b. X_{MS} + c. \theta_L$ ), au moins pour un produit Newtonien.

L'effet de  $\Gamma_L$  sur  $h$ , en maintenant  $\phi$  et  $\theta_L$  constants, reste assez faible au dessus du mouillage critique ( $\Gamma_L > \Gamma_{cri}$ ), avec une légère augmentation de  $h$  avec  $\Gamma_L$  pour l'eau pure et les quatre solutions de saccharose. On a pu observer les valeurs du mouillage

critique ( $\Gamma_{\text{cri}}$ ), tel que des taches sèches commencent à apparaître, à la fois visuellement, et par la chute de la courbe  $h = f(\Gamma_L)$ . Les valeurs seuil sont par exemple de  $\Gamma_L = 0,14$  ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ) pour l'eau pure et  $\Gamma_L = 0,09$  ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ) pour la solution de saccharose à  $X_{\text{MS}} = 50\%$ . Ces valeurs de  $\Gamma_{\text{cri}}$  sont obtenues en diminuant le débit, et il est possible que ces valeurs puissent varier différents si on les obtient en augmentant le débit. Pour un fluide Newtonien, et pour  $\Gamma_L > \Gamma_{\text{cri}}$ , une loi linéaire semble suffisante pour  $h = f(\Gamma_L)$ , avec un faible coefficient positif.

Plusieurs modèles ont été identifiés et comparés pour décrire les lois de variation de  $h = f(\phi, \theta_L, \Gamma_L \text{ et } X_{\text{MS}})$  pour des jus sucrés (Newtoniens), dans tout le domaine exploré. Un modèle polynomial linéaire de type ( $h = a + b \cdot \phi + c \cdot X_{\text{MS}} + d \cdot \theta_L + e \cdot \Gamma_L$ ) a donné un coefficient de corrélation élevé ( $R^2 \approx 0,9$ ) avec les jus sucrés, si on retire du plan expérimental les essais à très faibles  $\Delta\theta$  ( $< 2^\circ\text{C}$ ), et/ou à très faible concentration (eau pure), et/ou à faible  $\Gamma_L < \Gamma_{\text{cri}}$ , ce ne serait pas qui n'est pas problématique en général pour un but d'ingénierie industrielle. Donc, 5 coefficients ( $a, b, c, d, e$ ) semblent suffire pour décrire le comportement en ébullition d'un produit Newtonien, dans un vaste domaine de concentration, de pression  $P$ , et de  $\Delta\theta$ , à condition que  $\Gamma_L > \Gamma_{\text{cri}}$ . Deux simplifications du plan d'expérience ont été explorées : le plan central composite adapté à une forme « polynomiale », et le plan D-Optimal adapté à la forme « fonction puissance ». Les deux permettent de décrire le domaine en 20 à 25 essais seulement, tout en gardant un coefficient de corrélation élevé, avec un avantage pour le modèle linéaire.

La dernière partie de ce travail a concerné les liquides non-Newtoniens, en prenant la solution de carboxy-méthyle cellulose (CMC) comme produit modèle rhéo-fluidifiant. Nous avons étudié l'effet de chaque paramètre séparément dans un plan d'expérience complet, pour  $h = f(\phi, X_{\text{MS}}, \Gamma_L)$ , en maintenant ici  $P$  ou  $\theta_L$  constants (faute de temps). On peut exprimer 3 différences entre la solution Newtonienne et non-Newtonienne, qui sont :

- l'effet de  $\Gamma_L$  sur  $h$  (quand  $\Gamma_L > \Gamma_{\text{cri}}$ ), puisqu'avec la solution non-Newtonienne,  $h$  diminue légèrement avec l'augmentation de  $\Gamma$  (contrairement au cas Newtonien), ce qui se traduit par un coefficient négatif dans le modèle linéaire même dans le domaine d'ébullition nucléée.

- la sensibilité de  $h$  à l'augmentation de  $\phi$  est un peu plus grande en non-Newtonien qu'en Newtonien surtout dans le régime d'ébullition nucléée.
- la transition du régime non nucléé vers régime nucléé apparaît à  $\Delta\theta$  ou  $\phi$  plus élevé pour les solutions de CMC que les solutions de saccharose.

Pour ce produit non-Newtonien, les modèles linéaires et non linéaires de  $h = f(\phi, \Gamma_L, X_{MS})$  à pression constante, sont présentés. Le modèle polynomial linéaire de type :  $h = a + b\phi - cX_{MS} - e\Gamma_L$  reste utilisable dans tout le domaine d'expérience exploré, avec coefficient de corrélation élevé ( $R^2 \approx 0,97$ ).

Suite à ce travail, nous proposons les perspectives suivantes :

- Comparer les résultats obtenus sur notre pilote et les modèles pour les jus sucrés, avec les valeurs constatées sur un évaporateur à flot tombant réel, utilisé dans l'industrie, dans le but de valider notre démarche pour un usage industriel. Il faudra tenir compte au mieux de la différence entre l'écart de température global de l'appareil industriel, et l'écart  $\Delta\theta$  (paroi/produit) utilisé ici.
- Continuer d'explorer les faibles  $\Delta\theta$  ( $< 2^\circ\text{C}$ ), en particulier dans le but d'utiliser une compression mécanique de la vapeur émise (CMV), ce qui suppose des mesures de températures plus précises.
- Améliorer l'étanchéité de notre pilote, pour explorer un domaine de pression plus faible ( $P \approx 90$  mbar, correspondant à  $\theta_{\text{sat}} \approx 44^\circ\text{C}$ , au lieu de 250 mbar actuellement), tels qu'utilisés pour les produits thermosensibles ou encrassant
- Résoudre de problème de la mousse stable avec certains produits moussants, vis à vis de la pompe de recirculation et de la pompe à vide. On peut prévoir une pompe de recirculation du liquide, susceptible de « faire tomber » les mousses par arrosage, indépendamment de la pompe fixant  $\Gamma_L$ .
- Installer un régulateur de température, permettant de piloter la puissance de chauffe à partir de la mesure température de paroi, dans le but de travailler « à température de surface » imposée, au lieu de « à flux imposé ». On se rapprocherait ainsi de la situation du chauffage par la vapeur, mais nous pensons que les résultats expérimentaux décrits précédemment ne changeraient pas

- Mettre au point d'une technique de mesure de l'épaisseur  $\delta$  (mm) du film liquide ruisselant sur la surface ( par exemple : par « laser-induced photochromic dye tracer technique » [ Karimi et al. 1998]).
- Installer une camera rapide pour observer la limite de nucléation de façon plus précise, et sur une zone étendue.
- Etudier l'effet des matières en suspension non solubles (MES), pouvant agir comme germes de nucléation potentiels, soit en ajoutant, soit pour évaluer l'effet d'une filtration éventuelle.
- Comparer les résultats obtenus avec dévers liquides, Newtoniens ou non-Newtoniens, pour évaluer la variabilité des lois donnant  $h = f(\phi, X_{MS}, \theta_L, \Gamma_L)$ , et approfondir les différences entre comportement Newtonien et non-Newtonien.
- Continuer d'explorer d'autres formes de modèles dits « améliorés », plus représentatifs des lois expérimentales.
- Etudier la cinétique d'encrassement sur  $h$  pour quelques produits alimentaires (lait, jus de tomate, etc.....).

Ahmed, M. N., Kelly, B. P., & Magee, T. R. A. (1999). Measurement of heat transfer coefficients using stationary and moving particles in tube flow. Institution of chemical engineers. Trans IChemE, 77, C, 213- 222.

Ahmed, S. Y. & Kaparthi, R. (1963). Heat transfer studies of falling film heat exchangers. Indian Journal of Technology, 1, 377-381.

Alhusseini, A. A., Tuzla, K., & Chen, J. C. (1998). Falling film evaporation of single component liquids. International Journal of Heat Mass Transfer, 41(12), 1623-1632.

Bakker, H. H. C., March, C., Paramalingam, S., & Chen, H. (2004). Cascade controller design for concentration control in a falling-film evaporator.

Benjamin J., Cagna A., & Lucassen-Breynders E. H. (1996). Viscoelastic properties of triacylglycerol/water interfaces covered by proteins. Colloids and surface A: Physiochemical and engineer aspects, 114, 245-254.

Ben Salima, A., Heyd, B., Danzart, M., & Ducauze, J. C. (1998). Plans D-optimaux : une stratégie de réduction du nombre de produits en cartographie des préférences. Science des aliments, 18, 471-483.

Bimbenet, J. J., Duquenoy, A., & Trystram, G. (2002). Génie des procédés alimentaires. Paris : Dunod.

Bird, R. B., Stewart, W.E., & Lightfoot, E. N. (1960). Transport phenomena. New York, London: Copyright.

Bonjour, J., Boulanger, F., Gentil, D., & Lallemand, M. (1997). Etude phénomologique de l'ébullition en espace confiné à partir d'un site de nucléation isolé. Rev Gén Therm, 36, 562-572.

Bonnier, G., Erard, L., Mamouni, A., Meyzonnette, J. L., Pascal, J. C., Priel, M., & Veau, J. (2002). Mesures et Contrôle. In Techniques de l'ingénieur, R 2350-8.

Bouman, S., Waalewijn, R., De Jong, P., & Van Der Linden, H.J.L. J. (1993). Design of falling - film evaporator in the dairy industry. *Journal of the Society of Dairy Technology*, 46 (3), 100-106.

Chawakul, N., Chuaprasert, S., Douglas, S. P., & Luewisutthichat, W. (2001). Simulation of an agitated thin film evaporator for concentrating orange juice using aspen plus <sup>TM</sup>. *Journal of Food Engineering*, 47, 247-253.

Chen, H., & Jebson, R.S. (1997). Factors affecting heat transfer in falling film evaporator. *Institution of Chemical Engineers*, 57 (C), 111-116.

Chun, K. R., & Seban, R. A. (1971). Heat transfer to evaporating liquid films. *Transactions of the ASME, Journal of Heat Transfer*, 93 (C), 391-396.

Chun, M. H., & Park, S. J. (1995). Effects of turbulence mode and intrfacial shear on heat transfer in turbulent falling liquid film. *International communications in heat and mass transfer*, 22,1, 1-12.

Cole, R., & Shulman, H. L. (1966). Bubble growth rates at high jakob numbers. *Int. j. heat mass transfer*, 9(12), 1377- 1390.

Cooper, M. G. (1965). The microlayer bubble growth in nucleate pool boiling. *Int. j. heat mass transfer*, 8, 915-933.

Delhaye, J. M. (1990). Transfert de chaleur associée à l'ébullition ou à la condensation des corps purs sur des parois. In *Techniques de L'ingénieur, Traité Généralités*, A 1560-1, A1561-1.

Du, X. Z., Wang, B. X., Wu, S. R., & Jiang S. Y. (2002). Energy analysis of evaporating thin falling film instability in vertical tube. *International journal of heat and mass transfer*, 45, 1889-1893.

- El Haj Assad, M., & Lampinen M. J. (2002). Mathematical modeling of falling liquid film evaporation process.
- Forester, H. K., & Zuber, N. (1955). Dynamics of vapor bubbles and boiling heat transfer, A. I. Ch. E. J., 1(4), 531-535.
- Ganot, A. (1876). *Traité de physique*. 17 ed. Paris.
- Gregorig, R., & Lescanne, P. (1965). *Echangeurs de chaleur*. Librairie polytechnique Béranger : Paris.
- Hahne, E., & Grigull, U. (1977). *Heat transfer in boiling*. Washington: Hemisphere.
- Herbert, L. S., & Stern, U. J. (1968). An experimental investigation of heat transfer to water in film flow. *Canadian Journal of Chemical Engineering*, 46, 401-407.
- Hernandez, E., Chen, C. S., Johnson, J., & Carter, R. D. (1995). Viscosity changes in orange juice after ultrafiltration and evaporation. *Journal of food engineering*, 25, 387-396.
- Hoffman, P. (2004). Plate evaporators in food industry-theory and practice. *Journal of food engineering*, 61, 515-520.
- Incropera, F. P., & Dewitt, D. P. (2002). *Fundamentals of heat and mass transfer* (5th ed., pp. 594-604). John Wiley & Sons: Hoboken.
- Jebson, S. R., & Chen, H. (1997). Performances of falling film evaporator on whole milk and a comparison with performance on skim milk. *Journal of Dairy Research*, 64, 57-67.
- Jin, W. X., Low, S. C., & Quek, T. (2002). Preliminary experimental study of falling film heat transfer on a vertical doubly fluted plate. *Desalination*, 152, 201-206.

Junhong, L., Lin, Y., & Hesheng, L. (1995). An experimental study on the critical heat flux (CHF) of flow boiling in a highly viscous fluid in vertical tubes. *Chemical engineering and processing*, 34, 35-40.

Karimi, G., & Kawaji, M. (1998). An experimental study of freely falling films in a vertical tube. *Chemical engineering science*, 53, 20, 3501- 3512.

Krupiczka, R., Rotkege, A., & Ziobrowski, Z. (2002). Heat transfer to evaporating liquid films within a vertical tube. *Chemical Engineering and Processing*, 41, 23-38.

Lallemand, M. (2005). Transfert en changement de phase. Ebullition libre. In *Techniques de L'ingénieur*, BE 8 235-1.

Leleu, R. (1992). Evaporation. In *Techniques de L'ingénieur*, *Traité Génie et Procédés Chimiques*, J 2320, 1 - 12.

Leleu, R. (1997). Transferts de chaleur. In *Techniques de L'ingénieur*, *Traité Génie et Procédés Chimiques*, J 1080, 3-18.

Lewicki, P. P. (2004). Water as the determinant of food engineering properties. A review. *Journal of food engineering*, 61, 483-495.

Loncin, M. (1991). *Génie industriel alimentaire*. Masson : Paris, Milan, Barcelone, Bonne.

Madsen, R. F. (1996). A new programme for calculating sugar factory energy. *INT. SUGAR JNL*, 98, 1167, 134- 137.

Mc Adams, W. H., Drew, T. B., & Bays, G. S. (1940). Heat transfer to falling – water films, *Transactions of ASME*, 62, 627.

Mezdour, S., Cuvelier, G., Cash, M. J. & Michon, C. (2007). Surface rheological properties of hydroxypropyl cellulose at air-water interface. *Food hydrocolloids*, 21, 776-781.

Minton, E. P., (1986). Handbook of evaporation technology. Noyes publication: Mill Road, Park Ridge, New Jersey.

Miranda, V., & Simpson, R. (2005). Modelling and simulation of an industrial multiple effect evaporator: tomato concentrate. *Journal of Food Engineering*, 66, 203 – 210.

Morgenroth, B., Jayatilka, D., & Punter, G. (1997). Development of plate evaporator technology, the market place and the choice for the sugar technologist. *Zuckerindustrie*, 122 (9), 691-699.

Morison, K. R., Worth, Q. A. G., & O'Dea, N. P. ( 2006). Minimum wetting and distribution rates in falling film evaporators. *Food and bioproducts processing*. Trans IchemeE, part C, 84 (C4), 302-310.

Nusselt, W. (1916). Die oberflächenkondensation des Wasserdampfes, *vdi-z*, 60, 542-575.

Pacheco, C. R. F., & Frioni, L. S. M., (2004). Experimental results for evaporation of sucrose solution using a climbing/falling film plate evaporator. *Journal of food engineering*, 64, 471-480.

Paramalingam, S., Winchester, J., & March, C. (2000). On the fouling of falling film evaporators due to film break – up. *Institution of Chemical Engineers Trans I Chem. E*, 78 (C), 79-83.

Park, C. D., Nosoko, T., Gima, S., & RO, S. T. ( 2004). Wave-augmented mass transfer in a liquid film falling inside a vertical tube. *International journal of heat and mass transfer*, 47, 2587- 2598.

Peacock, S. D., & Love, D. J. (2003). Clear juice heater- Do we need them? *International sugar journal*, 105, 1260, 582-588.

Perry, R. H., & Green, D. W. (1984). *Perry's Chemical Engineers Handbook* (6th ed., pp. 10-23). McGraw-Hill: New York.

Proc, (1994). International commission for uniform methods of sugar analysis (21<sup>st</sup> Session ICUMSA, 344).

Prost, J. S., Gonzaalez M. T., & Urbicain, M. J. (2006). Determination and correlation of heat transfer coefficients in a falling film evaporator. *Journal of Food Engineering*, 4, 73, 320-326.

Quaak, P., Van Wijck, M. P. C. M., & Van Haren, J. J. (1994). Comparison of process identification and physical modelling for falling-film evaporators. *Food control*, 5, 2, 73-82.

Rahman, S., (1995). *Food properties handbook*. CRC Press, Inc: Florida.

Rai, P., Majumdar, G. C., DasGupta, S., & De, S. (2005). Prediction of the viscosity of clarified fruit juice using artificial neural network: a combined effect of concentration and temperature. *Journal of food engineering*, 68, 527- 533.

Rao, M.A. & Rizvi, S.H. (1995). *Engineering properties of food* (2<sup>nd</sup> ed, PP.41-59). Marcel. Dekker. Inc.: New York.

Rohsenow, M.W., Hartnett, P. J.(1973). *Handbook of heat transfer* (pp.13-1 - 13-64). McGraw-Hill, Inc: United States of America.

Rosilio, V., Albrecht, G., Baszkin, A., Merel, L. (2000). Surface properties of hydrophobically modified carboxymethylcellulose derivaties. Effect of salt and proteins. *Colloids and surfaces B*, 19, 163-172.

Runyon, S.H., Rumsey, T. R., & McCarthy, K. L. (1991). Dynamic simulation of a non-linear model of a double effect evaporator. *Jounal of food engineering*, 14, 185-201.

Sacadura, J. F. (2000). *Initiation aux transferts thermiques* (6<sup>th</sup> ed, PP. 34-35). TEC &DOC: London Paris New York.

Sangrame, G., Bhagavathi, D., Thakare, H., Ali, S., & Das, H. (2000). Performance evaluation of a thin film scraped surface evaporator for concentration of tomato pulp. *Journal of food engineering*, 43, 205-211.

Schneider, F. (1979). *Sugar analysis: ICUMSA methods*, 137.

Seban, R. A., & Faghari, A. (1976). Evaporation and heating with turbulent falling liquid films. *Journal of heat transfer*, 98, 315-318.

Spécification et Normes SPS-4, (1994). ICUSMA, mesures et tables des masses volumiques- officielles.

Spécification et Normes SPS-5, (1994). ICUSMA, tables de viscosité de solutions pures de saccharose – officielles.

Stephan, P., & Kern, J. (2004). Evaluation of heat and mass transfer phenomena in nucleate boiling. *International journal of heat and fluid flow*, 25, 140-48.

Tiwari, G. N., Prakash, O.M., & Kumar, S. (2004). Evaluation of convective heat and mass transfer for pool boiling of sugar cane juice. *Energy Conversion & Management*, 45, 171 -179.

Tonelli, S., Romagnoli, J. A., & Porras, J. A. (1990). Computer package for transient analysis of industrial multiple effect evaporation. *Journal of food engineering*, 12, 267-281.

Uche, J., Artal, J., & Serra, L. (2002). Comparison of heat transfer coefficient correlations for thermal desalination units. *Desalination*, 152, 195-200.

Van der Poel, P. W., Schiwec, H., & Schwartz, T. (1998). *Sugar Technology Beet and Cane Sugar Manufacture*. Verlag Dr. Albert Bartens KG: Berlin.

Van Stralen, S. J. D., & Cole, R. (1979). Evaporation and condensation of film in water desalination units (Sideman, S., & Moalem Maron, D). Boiling phenomena (Chap. 27 PP. 903-922). Hemisphere: Washington.

Van Stralen, S. J. D., & Cole, R. (1979). Nucleate boiling in thin liquid films ( Mesler, R.). Boiling phenomena (Chap. 23 PP. 813-819). Hemisphere: Washington.

Van Wijck, M. P. C. M., Quaak, P., & Van Haren, J. J. (1994). Multivariable supervisory control of a four-effect falling- film evaporateur. Food control, 5, 2, 83-89.

Vasseur, J., & Loncin, M. (1983). High heat transfer coefficient in thin film drying: application to drum drying. ICEF, 3, 217-225.

Wadekar, V. V. (2002). Heat transfer coefficient prediction for falling film evaporation used for solvent removal from highly viscous liquids. Trans IChemE, 80, 267-271.

Wadekar, V. V., & Hills, D. P. (2001). Evaporative heat transfer for solutions containing dissolved solids: effect of vapour-liquid equilibrium and mass transfer. Trans IChemE, 79, 477-483.

Wang, B. X., Zhang, J. T., & Peng, X. F. (2000). Experimental study on the dryout heat flux of falling liquid film. International journal of heat and mass transfer, 43, 1897- 1903.

Wilk, W (1962). Ver. Deut. Inngr. Forschungsh, 490.

Yih S. M. (1986). Modelling heat and mass transport in falling liquid films. Handbook of Heat and Mass Transfer (pp. 134-143). Gulf Publishing: Houston.

## Annexe 1

### Programme D- optimal (Fedorov) [Bertrand Heyd]

```
function[critopt,Xn,dans]=fedorov(Xnc,n);
%la matrice estXnc
%nc le nombre de candidats totaux
%n ceux a prendre

nc=size(Xnc,1);

%si on veut aléariser
ALEA=1;

if ALEA
    [beta,ndx]=sort(rand(nc,1));
else
    ndx=1:n;
end
dans=ndx(1:n);
hors=ndx(n+1:nc);

hiscrit=[];
%etapel
Xn=Xnc(dans,:);
iopt=0;jopt=0;
critfin=1000;

while critfin>0.001
    %etap2
    critopt=0;
    for i=1:n
        for j=1:(nc-n)
            essai=dans;
            essai(i)=hors(j)
            Xe=Xnc(essai,:);
            crit=det(Xe'*Xe);
            if critopt<crit
                iopt=i;
                jopt=j;
                critopt=crit;
            end
        end
    end
    end
    %etap3
    temp=hors(jopt);
    hors(jopt)=dans(iopt);
```

```

dans(iopt)=temp;
dans=sort(dans);hors=sort(hors);
Xn=Xnc(dans,:);

hiscrit=[hiscrit critopt];
lh=length(hiscrit);
if length(hiscrit)>5;
    critfin=std(hiscrit(lh-5:lh))./mean(hiscrit(lh-5:lh))
end
end

% Le plan D-optimal du jus sucré.
x=10:15:70;
fi=2:19.5:80;
t=70:7.5:100;
gamma=0.21:0.1225:0.7;

[X,F]=meshgrid(x,fi);
P=[X(:) F(:)];
t=ones(25,1)*t;

P=kron(ones(5,1),P);

P = [P t(:)];

gamma=ones(length(P),1)*gamma;
P=kron(ones(5,1),P);
P = [P gamma(:)];
X=[ones(size(gamma(:))), log(P)];

[critopt,Xn,dans]=fedorov1(X,25);

critopt
plan=P(dans,:)

```

## Annexe 2

**Les modèles de viscosité des solutions de saccharose à  $X_{MS} = 30, 50, 70$  en fonction de la température loi d'Arrhenius.**

$$\ln \eta_{30\%} = -14,11 + 2456 \frac{1}{T} \quad R^2 = 0,986 \quad (1)$$

$$\ln \eta_{50\%} = -16,08 + 3501 \frac{1}{T} \quad R^2 = 0,994 \quad (2)$$

$$\ln \eta_{70\%} = -22,28 + 6344 \frac{1}{T} \quad R^2 = 0,991 \quad (3)$$

avec la viscosité en (Pa .s) et la température en °K. L'évolution de la  $\ln \eta$  calculé à partir de base de donnée en ICUMCA en fonction de l'inverse de la température pour solution de saccharose  $X_{MS} = 50\%$  par exemple est présentée sur la figure (10).

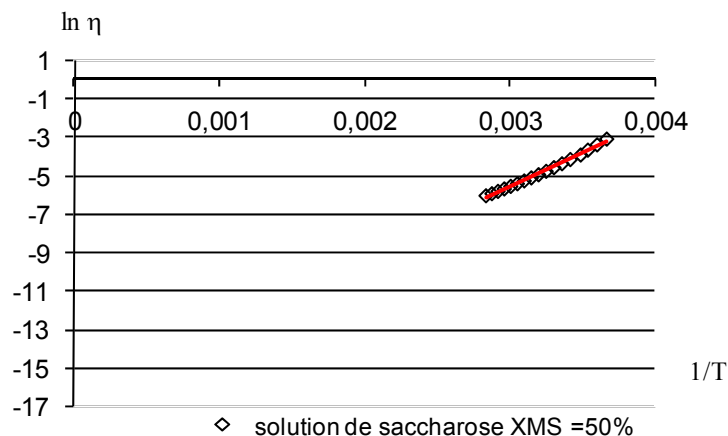


Figure (1) : Variation de  $\ln \eta$  en fonction de l'inverse de la température (relation d'Arrhenius) pour solution de saccharose  $X_{MS} = 50\%$ .

Des modèles (1, 2, 3) nous avons calculé la viscosité des solutions de saccharose (30, 50, 70 % MS) à la température d'ébullition pour celui –ci solutions à  $P = 701$  et  $1010$  mbar).

## Annexe 3

### Les modèles de viscosité spécifique des solutions de saccharose à P = (311, 474, 701, 1010 mbar) en fonction de la concentration de matière sèche.

A partir des résultats qui étaient obtenus dans l'annexe (1) et la relation entre de la viscosité et la concentration de matière sèche et pour la température d'ébullition à P = 1010 mbar, en figure (1), nous avons obtenu le modèle pour calculer la viscosité de la solution de saccharose  $X_{MS} = 10\%$  pour les différentes températures d'ébullition à P = 311, 474, 701, 1010 mbar. Les quatre modèles sont :

$$\ln \eta_{\text{spec}} = -10,86 + 3,360 \ln X_{MS} \quad (P = 311 \text{ mbar}) \quad R^2 = 0,92 \quad (4)$$

$$\ln \eta_{\text{spec}} = -10,33 + 3,186 \ln X_{MS} \quad (P = 474 \text{ mbar}) \quad R^2 = 0,92 \quad (5)$$

$$\ln \eta_{\text{spec}} = -12,45 + 3,641 \ln X_{MS} \quad (P = 701 \text{ mbar}) \quad R^2 = 0,97 \quad (6)$$

$$\ln \eta_{\text{spec}} = -11,7 + 3,383 \ln X_{MS} \quad (P = 1010 \text{ mbar}) \quad R^2 = 0,97 \quad (7)$$

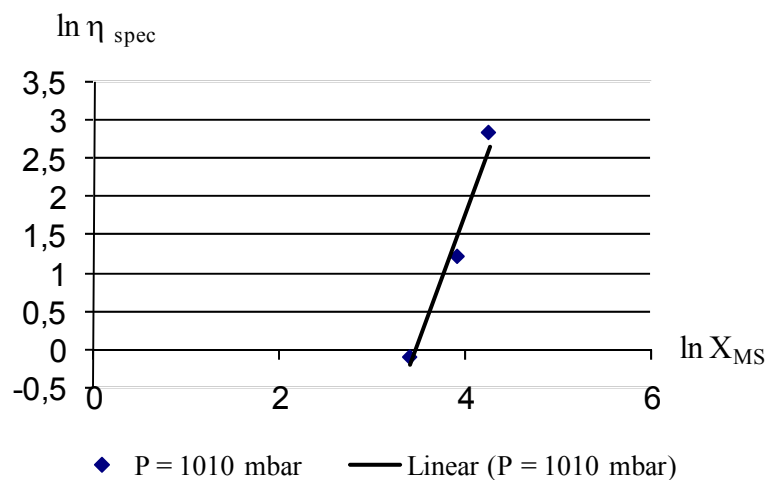


Figure (1) : Variation de  $\ln \eta_{\text{spec}}$  en fonction de l'inverse de  $\ln X_{MS}$  pour solution de saccharose à P = 1010 mbar.

- Nous avons fait le calcul des équations précédents (de 1 à 7 annexes 1 et 2) pour tous les viscosités de solutions de saccharose de  $X_{MS} = 10\%$  (à P = 311, 474, 701 et 1010 mbar) et de  $X_{MS} = 30, 50$  et  $70\%$  (à P = 701 et 1010 mbar).
- A partir des viscosités déjà existant dans la base de données (ICUMCA) et les viscosités étaient calculées d'équations (1 à 7), nous avons tracé la variation du

coefficient de transfert de chaleur en fonction de en fonction de la viscosité de solutions de saccharose ( $X_{MS} = 10, 30, 50$  et  $70\%$ ) et à pression ( $P = 311, 474, 701$ , et  $1010$  mbar) pour deux flux de chaleur  $\phi = 20$  et  $80$  ( $\text{kW} \cdot \text{m}^{-2}$ ) et  $\Gamma = 0,56$  ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$ ) ( figure 44).

## Annexe 4

### Les viscosités des solutions de CMC (Loi de puissance).

- I. Solution de CMC 0,5% : l'évaluation de la contrainte de cisaillement( $\tau$ ) en fonction du taux de cisaillement ( $\dot{\gamma}$ ), à quatre différent température (20, 30, 50, 70 °C), est présenté en figure (1).

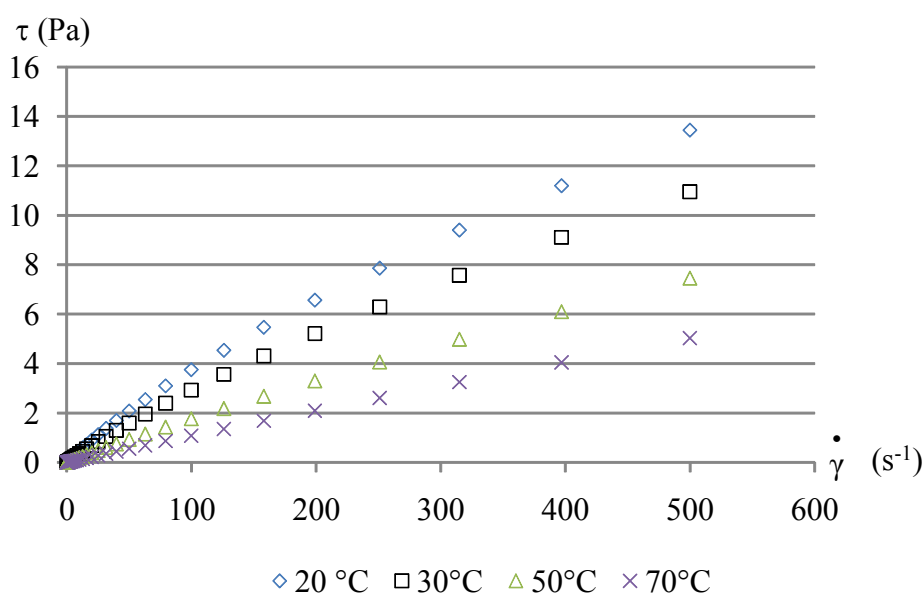


Figure (1) : Evaluation de la contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement pour la solution de CMC  $X_{MS} = 0,5\%$  à quatre différents température (20, 30, 50 et 70°C).

D'après les résultats en figure (1), nous pouvons remarquer que la solution de CMC  $X_{MS} = 0,5\%$  a un comportement rhéologique non Newtonien (rhéofluidifiant) à basse température  $< 50^\circ\text{C}$  mais à  $70^\circ\text{C}$  elle a un comportement rhéologique Newtonien.

II. Solution de CMC 1% : Le comportement rhéologique de la solution de CMC 1% à quatre différentes températures (20, 30, 50 et 70°C) est présenté en figure (31). Nous pouvons remarquer des courbes qui sont présenté en figure (2) que la solution CMC 1% a un comportement rhéologique non Newtonien à toutes les températures étudiées.

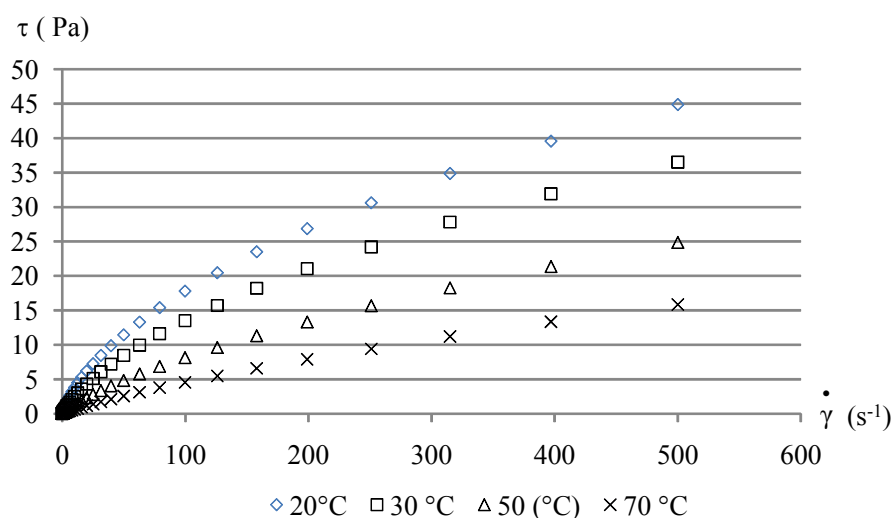


Figure (2) : Evaluation de la contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement pour la solution de CMC  $X_{MS} = 1\%$  à quatre différents température (20, 30, 50 et 70°C).

Pour explorer la loi de puissance pour la solution de CMC 1% à 70 °C, nous avons tracé la contrainte de cisellement en fonction du taux de cisaillement en échelle logarithmique. La courbe est présentée en figure (3).

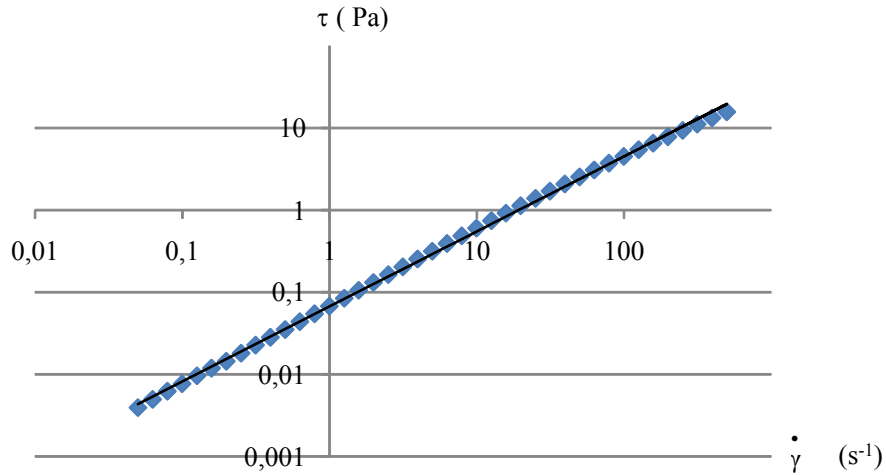


Figure (3) : Evaluation de la contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement en échelle logarithmique pour la solution de CMC  $X_{MS} = 1\%$  à température ( $70^{\circ}\text{C}$ ).

D'après la courbe en figure (3), le modèle qui nous avons le obtenu selon la loi de puissance est :

$$\log \tau = \log 0,067 + 0,914 \log \dot{\gamma} \quad \text{Ou} \quad \tau = 0,067 \dot{\gamma}^{0,914} \quad (R^2 = 0,999) \quad (1)$$

Des figures (2 et 3) et en comparer l'équation (1) avec la loi de puissance ( $\tau = k \dot{\gamma}^n$ ), nous pouvons remarquer que l'exposant  $n$  en équation (1) inférieur de 1 et la solution CMC 1% a un comportement rhéologique non Newtonien et rhéofluidifiant. Dans ce cas la viscosité diminue avec l'augmentation du taux de cisaillement. L'évaluation de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour CMC 1% à  $70^{\circ}\text{C}$  présenté en figure (4).

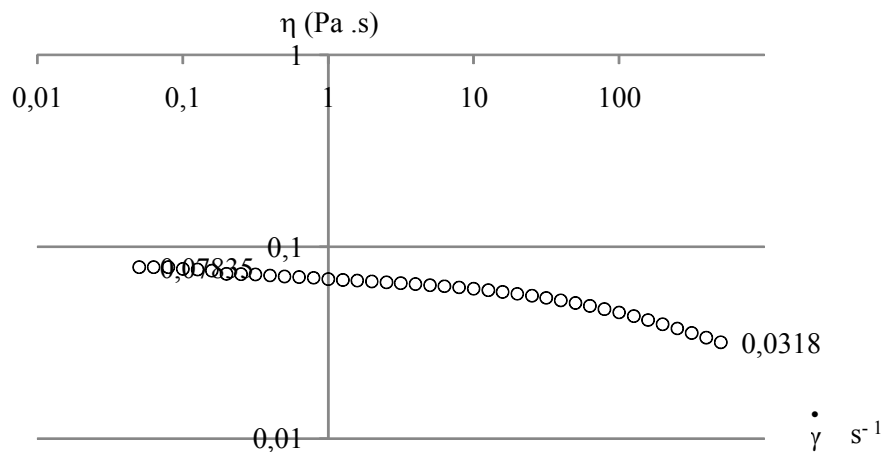


Figure (4) : Evaluation de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour la solution de CMC  $X_{MS} = 1\%$  à  $70^\circ\text{C}$ .

En figure 4, nous pouvons remarquer que la viscosité de la solution de CMC 1% à  $70^\circ\text{C}$  diminue de 0,078 à 0,032 (Pa.s) en fonction d'augmentation du taux de cisaillement de 0,05 à  $500\text{ (s}^{-1}\text{)}$ .

III. Solution de CMC 2% : L'évaluation de la contrainte de cisaillement en fonction du tau de cisaillement à quatre différentes températures (20, 30, 50 et  $70^\circ\text{C}$ ) pour la solution de CMC 2 % est présenté en figure (5).

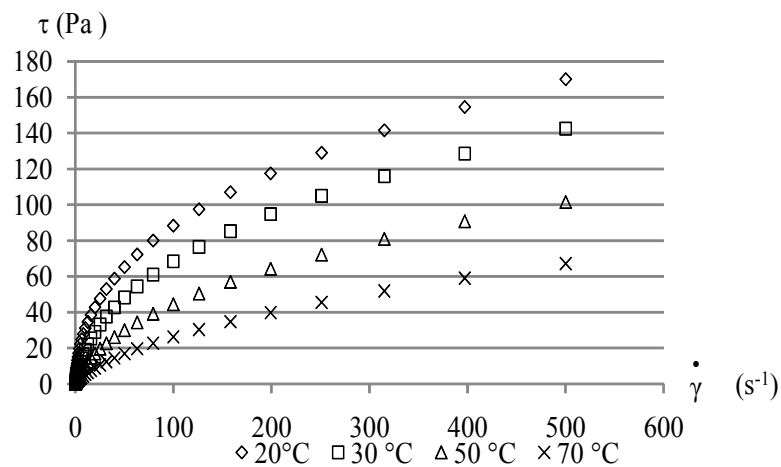


Figure (5) : Evaluation de la contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement pour la solution de CMC  $X_{MS} = 2\%$  à quatre différents température (20, 30, 50 et  $70^\circ\text{C}$ ).

Pour explorer la loi de puissance pour la solution de CMC 2 % à 70 °C, nous avons tracé la contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement en échelle logarithmique. La courbe est présentée en figure (6).

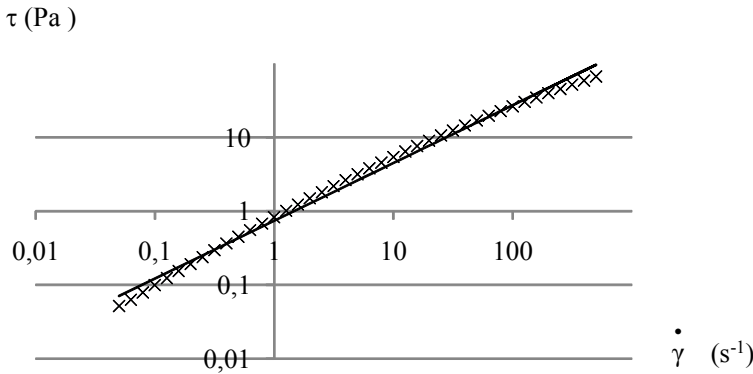


Figure (6) : Evaluation de la contrainte de cisaillement en fonction du taux de cisaillement en échelle logarithmique pour la solution de CMC  $X_{MS} = 2\%$  à température (70°C).

D'après la courbe en figure (6), le modèle qui nous avons obtenu selon la loi de puissance est :

$$\log \tau = \log 0,743 + 0,783 \log \dot{\gamma} \quad \text{Ou} \quad \tau = 0,743 \dot{\gamma}^{0,783} \quad (R^2 = 0,993) \quad (2)$$

En comparer l'équation (2) avec la loi de puissance ( $\tau = k \dot{\gamma}^n$ ), nous pouvons remarquer que l'exposant  $n$  en équation (2) inférieur de 1 et la solution CMC 2% a un comportement rhéologique non Newtonien et rhéofluidifiant. D'après les résultats de la viscosité pour les trois différentes concentrations de matière sèche (0,5, 1 et 2%), nous pouvons marquer que le comportement non Newtonien (rhéofluidifiant) devient plus prononcé lorsque la concentration de matière sèche augmente.

L'évaluation de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour CMC 2% à 70 °C présenté en figure (7).

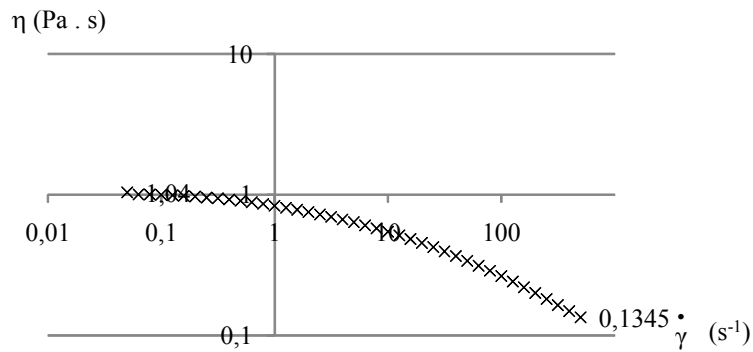


Figure (7) : Evaluation de la viscosité en fonction du taux de cisaillement pour la solution de CMC  $X_{MS} = 2\%$  à  $70^\circ\text{C}$ .

En figure (7), nous pouvons remarquer que la viscosité de la solution de CMC 2 % à  $70^\circ\text{C}$  diminue de 1,04 à 0,13 (Pa.s) en fonction d'augmentation du taux de cisaillement de 0,05 à 500 ( $\text{s}^{-1}$ ). Nous pouvons remarquer aussi des courbes en figures (4 et 7) qu'il y a un plateau Newtonien des solutions de CMC 1 et 2% au bas taux de cisaillement (par exemple la viscosité de CMC 2% reste indépendante du taux de cisaillement jusqu'au  $\dot{\gamma} = 0,12$  ( $\text{s}^{-1}$ )).

| Concentration   |   | Température (°C) |       |       |       |
|-----------------|---|------------------|-------|-------|-------|
| Solution de CMC |   | 20               | 30    | 50    | 70    |
| 0,1 %           | n | 0,97             | 0,98  | 0,99  | 0,995 |
|                 | K | 0,028            | 0,021 | 0,012 | 0,007 |
| 0,5 %           | n | 0,94             | 0,96  | 0,98  | 1     |
|                 | K | 0,05             | 0,04  | 0,02  | 0,01  |
| 1 %             | n | 0,77             | 0,84  | 0,89  | 0,93  |
|                 | K | 0,55             | 0,31  | 0,14  | 0,07  |
| 2 %             | n | 0,53             | 0,67  | 0,72  | 0,78  |
|                 | K | 8,5              | 3,45  | 1,69  | 0,76  |

Tableau 1 : Paramètres de loi de puissance pour les solutions de CMC  $X_{MS} = 0,1 - 0,5 - 1$  et 2% à quatre différentes températures (20, 30, 50 et 70%).

Remarques : On peut remarquer que la solution de CMC 0,1% à (50 et 70 °C) et la solution de CMC 0,5% à 70 °C ont de comportement rhéologique Newtonien (taux de cisaillement de 0,05 à 500 s<sup>-1</sup>).

## Annexe 5

### Les tableaux des planes d'expérience réduire (plane centrale composite – D-optimale).

Dans notre cas, nous n'avons pas refait les nouveaux tests selon le plan central composite « théorique » du tableau 8, mais nous avons choisi parmi les 640 essais du plan complet déjà fait, un plan d'expérience approché présenté en tableau 1. Pour des fonctions « régulières », ces petits écarts n'empêcheront pas une bonne corrélation. Si les essais n'étaient pas encore réalisés pour un produit nouveau, on appliquerait le plan théorique du tableau 8 (Chap.2), ce qui s'accompagnerait également de légers écarts expérimentaux.

|    | $X_{MS}$ (%) | $\phi$ (kW. m <sup>-2</sup> ) | $\theta_L$ (°C) | $\Gamma_L$ (l. m <sup>-1</sup> . s <sup>-1</sup> ) |
|----|--------------|-------------------------------|-----------------|----------------------------------------------------|
| 1  | 30           | 40                            | 89,79           | 0,42                                               |
| 2  | 30           | 40                            | 89,79           | 0,42                                               |
| 3  | 30           | 40                            | 89,69           | 0,21                                               |
| 4  | 30           | 40                            | 88,98           | 0,7                                                |
| 5  | 50           | 40                            | 73,61           | 0,42                                               |
| 6  | 50           | 40                            | 102,03          | 0,42                                               |
| 7  | 50           | 2                             | 81,64           | 0,42                                               |
| 8  | 50           | 76                            | 83,14           | 0,42                                               |
| 9  | 10           | 40                            | 90              | 0,42                                               |
| 10 | 70           | 40                            | 86,13           | 0,42                                               |
| 11 | 10           | 20                            | 78,94           | 0,29                                               |
| 12 | 10           | 20                            | 79,5            | 0,56                                               |
| 13 | 10           | 20                            | 90              | 0,29                                               |
| 14 | 10           | 20                            | 90              | 0,56                                               |
| 15 | 30           | 60                            | 79,72           | 0,29                                               |
| 16 | 30           | 60                            | 79,96           | 0,56                                               |
| 17 | 30           | 60                            | 90              | 0,29                                               |
| 18 | 30           | 60                            | 90              | 0,56                                               |
| 19 | 50           | 20                            | 73              | 0,29                                               |
| 20 | 50           | 20                            | 73              | 0,56                                               |
| 21 | 50           | 20                            | 91,7            | 0,29                                               |
| 22 | 50           | 20                            | 92,11           | 0,56                                               |
| 23 | 50           | 60                            | 73,8            | 0,29                                               |
| 24 | 50           | 60                            | 79,53           | 0,56                                               |
| 25 | 50           | 60                            | 92,5            | 0,29                                               |
| 26 | 50           | 60                            | 92,5            | 0,5775                                             |

Tableau 1 : plan central composite approché, utilisé pour les solutions de saccharose.

Si les essais n'étaient pas encore réalisés sur un produit nouveau, on appliquerait le plan D-optimal (tableau 9) établi selon la règle. Dans notre cas, nous n'avons pas refait les nouveaux tests, mais nous avons sélectionné parmi les 640 essais du plan complet déjà fait, un plan d'expérience approché, et présenté en tableau 2:

|    | $X_{MS}$ (%) | $\phi$ (kW. m <sup>-2</sup> ) | $\theta_L(^{\circ}C)$ | $\Gamma_L$ (l .m <sup>-1</sup> . s <sup>-1</sup> ) |
|----|--------------|-------------------------------|-----------------------|----------------------------------------------------|
| 1  | 10,00        | 2,00                          | 68,00                 | 0,21                                               |
| 2  | 10,00        | 59,30                         | 69,00                 | 0,21                                               |
| 3  | 10,00        | 77,70                         | 68,8                  | 0,21                                               |
| 4  | 50,00        | 2,13                          | 72,00                 | 0,21                                               |
| 5  | 70,00        | 2,13                          | 74,00                 | 0,21                                               |
| 6  | 70,00        | 79,00                         | 75,00                 | 0,21                                               |
| 7  | 10,00        | 2,00                          | 99,00                 | 0,21                                               |
| 8  | 10,00        | 59,70                         | 100,26                | 0,21                                               |
| 9  | 10,00        | 78,60                         | 100,24                | 0,21                                               |
| 10 | 70,00        | 2,10                          | 104,00                | 0,21                                               |
| 11 | 70,00        | 59,7                          | 105,50                | 0,21                                               |
| 12 | 70,00        | 79,40                         | 105,50                | 0,21                                               |
| 13 | 10,00        | 2,10                          | 99,14                 | 0,56                                               |
| 14 | 10,00        | 2,00                          | 68,20                 | 0,70                                               |
| 15 | 10,00        | 59,3                          | 69,00                 | 0,70                                               |
| 16 | 10,00        | 77,00                         | 69,00                 | 0,70                                               |
| 17 | 50,00        | 2,10                          | 72,40                 | 0,70                                               |
| 18 | 70,00        | 2,10                          | 75,50                 | 0,70                                               |
| 19 | 70,00        | 59,80                         | 76,60                 | 0,70                                               |
| 20 | 70,00        | 78,60                         | 77,00                 | 0,70                                               |
| 21 | 10,00        | 2,10                          | 99,40                 | 0,70                                               |
| 22 | 10,00        | 79,50                         | 99,90                 | 0,70                                               |
| 23 | 70,00        | 2,10                          | 104,20                | 0,70                                               |
| 24 | 70,00        | 59,80                         | 104,90                | 0,70                                               |
| 25 | 70,00        | 77,90                         | 104,90                | 0,70                                               |

## **-Publication liées à la thèse**

1) T. ALI ADIB, J. VASSEUR. Experimental results and modeling of boiling heat transfer coefficients in falling film evaporator usable for sugar solution evaporator design. Article soumis à “Chemical engineering and processing”. (2007)

2) T. ALI ADIB, J. VASSEUR. Bibliographic analysis of predicting heat transfer coefficients in boiling for applications in designing liquid food evaporators. Journal of food engineering (2008) - accepted 16 December 2007.

## **- Communications par affiches**

Journée scientifique de l'école doctorale ABIES, année 2005/2006, Mars 2006, Paris.

## Résultats expérimentaux de h pour jus sucré dans un plan d'expérience complet.

| $\phi$ W.m-2 | X %   | g/g  | $\Gamma_L$ l.m <sup>-1</sup> .s <sup>-1</sup> | $\theta_L$ °C | $\Delta\theta$ °C | $h$ W.m <sup>-2</sup> .°C <sup>-1</sup> |
|--------------|-------|------|-----------------------------------------------|---------------|-------------------|-----------------------------------------|
| 2093,94      | 10,00 | 0,21 | 67,34                                         | 0,82          | 2565,21           |                                         |
| 4130,08      | 10,00 | 0,21 | 67,49                                         | 1,50          | 2761,82           |                                         |
| 19730,10     | 10,00 | 0,21 | 68,12                                         | 5,49          | 3592,80           |                                         |
| 40395,77     | 10,00 | 0,21 | 68,46                                         | 9,43          | 4283,92           |                                         |
| 59276,34     | 10,00 | 0,21 | 68,67                                         | 14,16         | 4185,64           |                                         |
| 77669,07     | 10,00 | 0,21 | 68,81                                         | 19,18         | 4049,24           |                                         |
| 2116,45      | 10,00 | 0,21 | 77,89                                         | 0,95          | 2227,13           |                                         |
| 4034,29      | 10,00 | 0,21 | 78,20                                         | 1,38          | 2921,56           |                                         |
| 19811,88     | 10,00 | 0,21 | 78,67                                         | 7,24          | 2734,62           |                                         |
| 41067,89     | 10,00 | 0,21 | 79,26                                         | 13,68         | 3001,80           |                                         |
| 59812,33     | 10,00 | 0,21 | 79,53                                         | 17,56         | 3406,76           |                                         |
| 78977,32     | 10,00 | 0,21 | 79,41                                         | 20,51         | 3850,46           |                                         |
| 2037,28      | 10,00 | 0,21 | 88,41                                         | 0,34          | 5925,16           |                                         |
| 3984,82      | 10,00 | 0,21 | 88,74                                         | 0,93          | 4289,34           |                                         |
| 19648,49     | 10,00 | 0,21 | 89,45                                         | 6,32          | 3109,80           |                                         |
| 41047,42     | 10,00 | 0,21 | 89,77                                         | 12,49         | 3286,02           |                                         |
| 59445,65     | 10,00 | 0,21 | 89,96                                         | 15,49         | 3837,83           |                                         |
| 78143,30     | 10,00 | 0,21 | 90,08                                         | 17,80         | 4391,26           |                                         |
| 2046,62      | 10,00 | 0,21 | 99,01                                         | 0,02          | 95842,16          |                                         |
| 4045,39      | 10,00 | 0,21 | 99,14                                         | 0,67          | 6079,48           |                                         |
| 19816,19     | 10,00 | 0,21 | 99,88                                         | 4,91          | 4034,90           |                                         |
| 40486,43     | 10,00 | 0,21 | 100,18                                        | 10,97         | 3691,31           |                                         |
| 59678,35     | 10,00 | 0,21 | 100,26                                        | 15,36         | 3884,66           |                                         |
| 78549,77     | 10,00 | 0,21 | 100,24                                        | 18,11         | 4336,24           |                                         |
| 2112,58      | 10,00 | 0,29 | 67,62                                         | 0,81          | 2611,88           |                                         |
| 3944,79      | 10,00 | 0,29 | 67,59                                         | 1,50          | 2626,12           |                                         |
| 19450,52     | 10,00 | 0,29 | 68,16                                         | 5,42          | 3591,42           |                                         |
| 40923,71     | 10,00 | 0,29 | 68,45                                         | 9,34          | 4380,67           |                                         |
| 59203,30     | 10,00 | 0,29 | 68,63                                         | 13,60         | 4351,98           |                                         |
| 77096,91     | 10,00 | 0,29 | 68,86                                         | 18,42         | 4185,92           |                                         |
| 2110,82      | 10,00 | 0,29 | 78,43                                         | 0,76          | 2779,97           |                                         |
| 3662,60      | 10,00 | 0,29 | 78,50                                         | 1,55          | 2359,77           |                                         |
| 19607,75     | 10,00 | 0,29 | 78,94                                         | 6,82          | 2876,48           |                                         |
| 40427,91     | 10,00 | 0,29 | 79,43                                         | 13,48         | 2999,42           |                                         |
| 59468,45     | 10,00 | 0,29 | 79,63                                         | 17,68         | 3363,44           |                                         |
| 78382,16     | 10,00 | 0,29 | 79,59                                         | 20,73         | 3780,78           |                                         |

|          |       |      |       |       |         |
|----------|-------|------|-------|-------|---------|
| 2069,19  | 10,00 | 0,29 | 89,03 | 0,62  | 3362,56 |
| 4003,20  | 10,00 | 0,29 | 89,26 | 1,04  | 3852,46 |
| 19811,88 | 10,00 | 0,29 | 89,71 | 5,99  | 3307,58 |
| 41493,65 | 10,00 | 0,29 | 90,36 | 12,03 | 3449,76 |
| 59342,66 | 10,00 | 0,29 | 90,45 | 14,94 | 3971,61 |
| 79651,30 | 10,00 | 0,29 | 90,44 | 17,51 | 4549,00 |
| 2035,53  | 10,00 | 0,29 | 98,92 | 0,38  | 5366,52 |
| 4082,44  | 10,00 | 0,29 | 99,00 | 0,89  | 4596,96 |
| 19977,57 | 10,00 | 0,29 | 99,59 | 5,73  | 3489,02 |
| 41167,14 | 10,00 | 0,29 | 99,92 | 10,96 | 3757,08 |
| 59386,14 | 10,00 | 0,29 | 99,94 | 13,72 | 4329,96 |
| 78985,02 | 10,00 | 0,29 | 99,92 | 15,99 | 4939,93 |
| 2014,02  | 10,00 | 0,42 | 67,78 | 0,73  | 2758,88 |
| 4070,77  | 10,00 | 0,42 | 67,80 | 1,44  | 2824,62 |
| 19845,28 | 10,00 | 0,42 | 68,26 | 5,77  | 3438,81 |
| 41126,85 | 10,00 | 0,42 | 68,59 | 9,50  | 4330,09 |
| 59000,16 | 10,00 | 0,42 | 68,62 | 13,37 | 4412,81 |
| 78721,65 | 10,00 | 0,42 | 68,86 | 18,34 | 4293,15 |
| 2097,48  | 10,00 | 0,42 | 78,87 | 0,68  | 3105,81 |
| 4100,66  | 10,00 | 0,42 | 78,82 | 1,36  | 3008,03 |
| 19455,81 | 10,00 | 0,42 | 79,21 | 6,20  | 3135,80 |
| 40105,67 | 10,00 | 0,42 | 79,67 | 12,63 | 3175,64 |
| 59223,86 | 10,00 | 0,42 | 79,85 | 17,05 | 3472,87 |
| 77907,22 | 10,00 | 0,42 | 79,86 | 19,90 | 3915,84 |
| 2040,25  | 10,00 | 0,42 | 89,20 | 0,54  | 3757,04 |
| 4042,89  | 10,00 | 0,42 | 89,24 | 1,09  | 3722,45 |
| 19770,97 | 10,00 | 0,42 | 89,64 | 5,51  | 3589,36 |
| 40948,45 | 10,00 | 0,42 | 90,00 | 10,53 | 3887,70 |
| 60003,09 | 10,00 | 0,42 | 90,18 | 13,51 | 4440,96 |
| 77598,46 | 10,00 | 0,42 | 90,06 | 15,82 | 4905,89 |
| 2037,28  | 10,00 | 0,42 | 98,94 | 0,41  | 5013,79 |
| 4092,80  | 10,00 | 0,42 | 99,08 | 0,90  | 4545,93 |
| 20211,28 | 10,00 | 0,42 | 99,53 | 4,52  | 4470,28 |
| 40667,11 | 10,00 | 0,42 | 99,75 | 7,60  | 5349,15 |
| 59943,30 | 10,00 | 0,42 | 99,67 | 11,24 | 5333,18 |
| 78829,63 | 10,00 | 0,42 | 99,68 | 14,76 | 5342,43 |
| 2100,95  | 10,00 | 0,56 | 67,97 | 0,85  | 2458,91 |
| 4207,22  | 10,00 | 0,56 | 68,10 | 1,37  | 3071,11 |
| 19898,16 | 10,00 | 0,56 | 68,44 | 5,46  | 3643,07 |
| 40849,48 | 10,00 | 0,56 | 68,77 | 9,40  | 4344,95 |

|          |       |      |        |       |         |
|----------|-------|------|--------|-------|---------|
| 58968,14 | 10,00 | 0,56 | 68,86  | 13,31 | 4430,79 |
| 78721,65 | 10,00 | 0,56 | 69,01  | 17,38 | 4528,38 |
| 2110,82  | 10,00 | 0,56 | 79,15  | 0,71  | 2955,10 |
| 4143,38  | 10,00 | 0,56 | 79,18  | 1,27  | 3270,52 |
| 19665,67 | 10,00 | 0,56 | 79,48  | 5,72  | 3437,34 |
| 40531,44 | 10,00 | 0,56 | 79,80  | 11,70 | 3463,91 |
| 59427,30 | 10,00 | 0,56 | 80,01  | 15,53 | 3825,57 |
| 77975,26 | 10,00 | 0,56 | 80,05  | 18,96 | 4113,20 |
| 2024,91  | 10,00 | 0,56 | 89,54  | 0,47  | 4266,36 |
| 3957,77  | 10,00 | 0,56 | 89,62  | 0,98  | 4054,30 |
| 19589,53 | 10,00 | 0,56 | 89,91  | 5,10  | 3841,91 |
| 40755,01 | 10,00 | 0,56 | 90,31  | 9,80  | 4160,08 |
| 59699,94 | 10,00 | 0,56 | 90,42  | 13,10 | 4557,48 |
| 77741,96 | 10,00 | 0,56 | 90,52  | 15,85 | 4903,52 |
| 2147,20  | 10,00 | 0,56 | 99,14  | 0,43  | 5026,94 |
| 4037,20  | 10,00 | 0,56 | 99,25  | 0,92  | 4387,81 |
| 5000     |       |      |        | 1,2   | 4000    |
| 10000    |       |      |        | 2,9   | 3950    |
| 19602,37 | 10,00 | 0,56 | 99,68  | 4,90  | 3998,04 |
| 40997,94 | 10,00 | 0,56 | 99,99  | 9,99  | 4105,06 |
| 59292,37 | 10,00 | 0,56 | 100,00 | 13,18 | 4498,63 |
| 78966,78 | 10,00 | 0,56 | 99,99  | 16,03 | 4925,74 |
| 2021,65  | 10,00 | 0,70 | 68,22  | 0,74  | 2739,41 |
| 4086,95  | 10,00 | 0,70 | 68,27  | 1,31  | 3115,34 |
| 19711,85 | 10,00 | 0,70 | 68,56  | 5,62  | 3506,56 |
| 40772,04 | 10,00 | 0,70 | 68,89  | 10,35 | 3940,41 |
| 59262,68 | 10,00 | 0,70 | 68,96  | 14,22 | 4168,88 |
| 77096,91 | 10,00 | 0,70 | 69,09  | 18,27 | 4220,87 |
| 2070,93  | 10,00 | 0,70 | 79,33  | 0,69  | 3001,79 |
| 3989,13  | 10,00 | 0,70 | 79,35  | 1,16  | 3437,84 |
| 19694,66 | 10,00 | 0,70 | 79,60  | 5,42  | 3634,72 |
| 40556,08 | 10,00 | 0,70 | 79,93  | 10,66 | 3805,57 |
| 59267,13 | 10,00 | 0,70 | 79,91  | 14,51 | 4085,47 |
| 79236,06 | 10,00 | 0,70 | 80,10  | 17,63 | 4493,77 |
| 2029,28  | 10,00 | 0,70 | 89,37  | 0,51  | 3952,16 |
| 4029,40  | 10,00 | 0,70 | 89,45  | 1,04  | 3885,02 |
| 19917,53 | 10,00 | 0,70 | 89,70  | 4,68  | 4251,99 |
| 40565,36 | 10,00 | 0,70 | 89,94  | 8,86  | 4577,41 |
| 59853,61 | 10,00 | 0,70 | 90,01  | 12,38 | 4835,28 |
| 78348,04 | 10,00 | 0,70 | 90,10  | 15,09 | 5193,49 |
| 2120,62  | 10,00 | 0,70 | 99,39  | 0,46  | 4593,09 |
| 4157,04  | 10,00 | 0,70 | 99,34  | 1,03  | 4032,99 |

|          |       |      |        |       |         |
|----------|-------|------|--------|-------|---------|
| 20116,78 | 10,00 | 0,70 | 99,66  | 4,57  | 4400,62 |
| 40898,97 | 10,00 | 0,70 | 99,795 | 8,59  | 4759,32 |
| 60535,27 | 10,00 | 0,70 | 99,865 | 11,43 | 5293,89 |
| 79505,77 | 10,00 | 0,70 | 99,87  | 14,03 | 5665,52 |
| 2135,51  | 30,00 | 0,21 | 70,50  | 0,90  | 2365,57 |
| 4070,77  | 30,00 | 0,21 | 70,63  | 1,82  | 2241,40 |
| 5222,06  | 30,00 | 0,21 | 70,49  | 2,46  | 2120,33 |
| 10455,09 | 30,00 | 0,21 | 70,91  | 4,57  | 2290,12 |
| 19486,78 | 30,00 | 0,21 | 71,70  | 7,82  | 2492,33 |
| 41378,66 | 30,00 | 0,21 | 72,36  | 13,19 | 3138,07 |
| 59555,54 | 30,00 | 0,21 | 72,13  | 18,59 | 3203,60 |
| 78114,25 | 30,00 | 0,21 | 72,17  | 23,56 | 3315,84 |
| 2104,33  | 30,00 | 0,21 | 77,38  | 0,97  | 2167,12 |
| 4086,95  | 30,00 | 0,21 | 77,46  | 1,85  | 2203,95 |
| 5207,13  | 30,00 | 0,21 | 77,70  | 2,23  | 2333,13 |
| 10565,71 | 30,00 | 0,21 | 77,97  | 4,60  | 2295,19 |
| 19326,42 | 30,00 | 0,21 | 78,40  | 8,39  | 2302,46 |
| 41024,41 | 30,00 | 0,21 | 79,30  | 15,00 | 2734,94 |
| 58597,24 | 30,00 | 0,21 | 79,48  | 18,09 | 3238,81 |
| 78848,07 | 30,00 | 0,21 | 79,22  | 22,35 | 3527,80 |
| 2114,31  | 30,00 | 0,21 | 88,02  | 0,87  | 2420,85 |
| 4210,19  | 30,00 | 0,21 | 88,25  | 1,52  | 2766,87 |
| 5197,77  | 30,00 | 0,21 | 88,30  | 2,01  | 2586,85 |
| 10502,06 | 30,00 | 0,21 | 88,60  | 4,10  | 2562,84 |
| 19236,49 | 30,00 | 0,21 | 88,97  | 7,28  | 2643,22 |
| 41132,94 | 30,00 | 0,21 | 89,69  | 14,13 | 2910,25 |
| 59415,90 | 30,00 | 0,21 | 89,79  | 17,17 | 3459,99 |
| 78684,71 | 30,00 | 0,21 | 88,39  | 21,48 | 3663,35 |
| 2134,02  | 30,00 | 0,21 | 99,18  | 0,58  | 3675,31 |
| 4164,99  | 30,00 | 0,21 | 99,23  | 1,51  | 2760,74 |
| 5084,72  | 30,00 | 0,21 | 99,59  | 1,67  | 3050,52 |
| 10412,10 | 30,00 | 0,21 | 99,77  | 3,71  | 2803,31 |
| 19782,79 | 30,00 | 0,21 | 99,89  | 6,62  | 2987,18 |
| 41094,23 | 30,00 | 0,21 | 100,42 | 11,81 | 3480,62 |
| 60095,09 | 30,00 | 0,21 | 100,44 | 14,96 | 4015,88 |
| 79056,37 | 30,00 | 0,21 | 100,45 | 18,20 | 4343,12 |
| 2110,42  | 30,00 | 0,29 | 70,19  | 1,38  | 1529,95 |
| 4068,37  | 30,00 | 0,29 | 70,68  | 1,93  | 2108,71 |
| 5164,70  | 30,00 | 0,29 | 70,26  | 3,00  | 1724,10 |
| 10442,56 | 30,00 | 0,29 | 70,53  | 5,27  | 1982,97 |
| 19864,67 | 30,00 | 0,29 | 71,00  | 8,67  | 2292,30 |
| 41937,90 | 30,00 | 0,29 | 71,88  | 13,44 | 3120,96 |
| 59473,02 | 30,00 | 0,29 | 71,92  | 18,36 | 3239,78 |
| 79497,58 | 30,00 | 0,29 | 72,14  | 23,02 | 3452,97 |
| 2015,64  | 30,00 | 0,29 | 77,52  | 1,18  | 1705,16 |
| 4094,12  | 30,00 | 0,29 | 77,68  | 1,96  | 2088,87 |
| 5170,10  | 30,00 | 0,29 | 77,94  | 2,28  | 2270,92 |
| 10428,45 | 30,00 | 0,29 | 78,07  | 4,68  | 2227,17 |
| 19611,96 | 30,00 | 0,29 | 78,72  | 8,05  | 2435,38 |
| 40821,40 | 30,00 | 0,29 | 79,47  | 14,79 | 2760,71 |
| 59363,26 | 30,00 | 0,29 | 79,72  | 18,14 | 3272,28 |
| 80118,10 | 30,00 | 0,29 | 79,37  | 21,75 | 3683,06 |
| 2070,49  | 30,00 | 0,29 | 88,48  | 0,74  | 2816,95 |
| 4126,66  | 30,00 | 0,29 | 88,60  | 1,48  | 2785,78 |

|          |       |      |        |       |         |
|----------|-------|------|--------|-------|---------|
| 5137,76  | 30,00 | 0,29 | 88,42  | 2,09  | 2463,86 |
| 10527,22 | 30,00 | 0,29 | 88,75  | 3,90  | 2698,50 |
| 19411,05 | 30,00 | 0,29 | 89,16  | 6,91  | 2807,57 |
| 40923,71 | 30,00 | 0,29 | 89,74  | 13,72 | 2982,37 |
| 58676,74 | 30,00 | 0,29 | 89,86  | 16,66 | 3522,83 |
| 78721,65 | 30,00 | 0,29 | 89,87  | 19,54 | 4028,42 |
| 2112,91  | 30,00 | 0,29 | 99,22  | 0,69  | 3056,67 |
| 4130,08  | 30,00 | 0,29 | 99,37  | 1,45  | 2857,36 |
| 5164,70  | 30,00 | 0,29 | 99,57  | 1,72  | 2997,34 |
| 10492,70 | 30,00 | 0,29 | 99,78  | 3,69  | 2841,39 |
| 19736,49 | 30,00 | 0,29 | 100,06 | 6,58  | 2999,53 |
| 40991,92 | 30,00 | 0,29 | 100,40 | 11,42 | 3590,66 |
| 59484,54 | 30,00 | 0,29 | 100,42 | 15,90 | 3740,21 |
| 79302,06 | 30,00 | 0,29 | 100,42 | 17,64 | 4495,61 |
| 2126,29  | 30,00 | 0,42 | 70,82  | 1,10  | 1941,48 |
| 4248,00  | 30,00 | 0,42 | 70,82  | 1,99  | 2130,29 |
| 5082,00  | 30,00 | 0,42 | 70,57  | 2,67  | 1903,33 |
| 10502,06 | 30,00 | 0,42 | 70,90  | 4,51  | 2327,16 |
| 19665,67 | 30,00 | 0,42 | 71,00  | 7,97  | 2467,87 |
| 40599,28 | 30,00 | 0,42 | 71,82  | 13,12 | 3094,32 |
| 59177,88 | 30,00 | 0,42 | 72,41  | 17,05 | 3470,23 |
| 79513,73 | 30,00 | 0,42 | 72,26  | 21,26 | 3739,86 |
| 2076,84  | 30,00 | 0,42 | 78,38  | 1,00  | 2080,31 |
| 4237,45  | 30,00 | 0,42 | 78,40  | 1,91  | 2216,36 |
| 5103,22  | 30,00 | 0,42 | 78,61  | 2,08  | 2454,15 |
| 10491,82 | 30,00 | 0,42 | 78,67  | 4,28  | 2452,48 |
| 19572,40 | 30,00 | 0,42 | 78,78  | 7,70  | 2541,55 |
| 41333,20 | 30,00 | 0,42 | 79,46  | 13,65 | 3027,38 |
| 58608,66 | 30,00 | 0,42 | 79,80  | 16,43 | 3567,89 |
| 76861,86 | 30,00 | 0,42 | 79,76  | 19,22 | 3998,41 |
| 2066,64  | 30,00 | 0,42 | 88,81  | 0,71  | 2906,52 |
| 4086,34  | 30,00 | 0,42 | 88,80  | 1,51  | 2711,50 |
| 5161,97  | 30,00 | 0,42 | 88,82  | 1,87  | 2758,46 |
| 10454,31 | 30,00 | 0,42 | 88,98  | 3,70  | 2828,92 |
| 19385,24 | 30,00 | 0,42 | 89,26  | 6,58  | 2944,66 |
| 40790,72 | 30,00 | 0,42 | 89,79  | 12,71 | 3208,15 |
| 58979,63 | 30,00 | 0,42 | 89,81  | 16,11 | 3660,34 |
| 78198,39 | 30,00 | 0,42 | 89,88  | 18,90 | 4138,45 |
| 2052,84  | 30,00 | 0,42 | 99,35  | 0,70  | 2933,87 |
| 4115,81  | 30,00 | 0,42 | 99,50  | 1,38  | 2978,78 |
| 5108,20  | 30,00 | 0,42 | 99,68  | 1,73  | 2951,69 |
| 10523,26 | 30,00 | 0,42 | 99,86  | 3,45  | 3052,70 |
| 19589,53 | 30,00 | 0,42 | 100,14 | 6,33  | 3094,02 |
| 41763,71 | 30,00 | 0,42 | 100,43 | 11,91 | 3506,24 |
| 59810,10 | 30,00 | 0,42 | 100,42 | 14,48 | 4129,80 |
| 78779,60 | 30,00 | 0,42 | 100,42 | 17,10 | 4606,68 |
| 2112,91  | 30,00 | 0,56 | 70,99  | 1,17  | 1811,72 |
| 4234,06  | 30,00 | 0,56 | 70,90  | 1,95  | 2168,20 |
| 5164,70  | 30,00 | 0,56 | 70,71  | 2,55  | 2024,90 |
| 10539,79 | 30,00 | 0,56 | 70,75  | 4,63  | 2277,50 |
| 19886,28 | 30,00 | 0,56 | 71,03  | 7,40  | 2689,12 |
| 40864,89 | 30,00 | 0,56 | 72,09  | 11,73 | 3483,05 |
| 59892,74 | 30,00 | 0,56 | 71,97  | 15,73 | 3808,01 |
| 78547,93 | 30,00 | 0,56 | 72,16  | 19,45 | 4037,89 |

|          |       |      |        |       |         |
|----------|-------|------|--------|-------|---------|
| 2049,58  | 30,00 | 0,56 | 78,55  | 1,14  | 1793,05 |
| 4097,16  | 30,00 | 0,56 | 78,79  | 1,72  | 2379,77 |
| 5034,64  | 30,00 | 0,56 | 78,87  | 2,01  | 2501,51 |
| 10480,16 | 30,00 | 0,56 | 78,93  | 4,12  | 2544,57 |
| 19503,91 | 30,00 | 0,56 | 79,02  | 7,23  | 2697,95 |
| 41325,53 | 30,00 | 0,56 | 79,61  | 12,38 | 3338,72 |
| 59029,78 | 30,00 | 0,56 | 79,96  | 14,92 | 3956,46 |
| 76501,34 | 30,00 | 0,56 | 80,17  | 17,84 | 4289,07 |
| 2067,42  | 30,00 | 0,56 | 88,30  | 0,73  | 2819,23 |
| 4080,93  | 30,00 | 0,56 | 88,28  | 1,40  | 2918,12 |
| 5053,92  | 30,00 | 0,56 | 88,96  | 1,74  | 2900,35 |
| 10280,41 | 30,00 | 0,56 | 89,20  | 3,20  | 3208,42 |
| 19980,31 | 30,00 | 0,56 | 88,67  | 5,84  | 3421,22 |
| 41091,05 | 30,00 | 0,56 | 89,00  | 10,84 | 3788,96 |
| 58790,62 | 30,00 | 0,56 | 89,16  | 14,12 | 4164,86 |
| 78171,96 | 30,00 | 0,56 | 89,22  | 17,20 | 4544,20 |
| 2076,03  | 30,00 | 0,56 | 99,62  | 0,64  | 3263,99 |
| 4121,24  | 30,00 | 0,56 | 99,65  | 1,14  | 3614,26 |
| 5084,07  | 30,00 | 0,56 | 99,85  | 1,53  | 3329,43 |
| 10594,87 | 30,00 | 0,56 | 99,95  | 3,22  | 3289,64 |
| 19450,52 | 30,00 | 0,56 | 100,10 | 5,57  | 3491,49 |
| 41243,30 | 30,00 | 0,56 | 100,37 | 9,11  | 4525,03 |
| 58970,55 | 30,00 | 0,56 | 100,38 | 12,19 | 4837,39 |
| 76883,64 | 30,00 | 0,56 | 100,37 | 14,74 | 5216,94 |
| 2062,19  | 30,00 | 0,70 | 71,04  | 0,75  | 2750,61 |
| 4152,58  | 30,00 | 0,70 | 70,98  | 1,53  | 2706,24 |
| 5168,02  | 30,00 | 0,70 | 70,69  | 2,27  | 2274,44 |
| 10275,63 | 30,00 | 0,70 | 70,87  | 4,02  | 2559,01 |
| 19551,51 | 30,00 | 0,70 | 71,36  | 6,69  | 2921,84 |
| 40696,30 | 30,00 | 0,70 | 71,66  | 11,26 | 3613,50 |
| 58865,41 | 30,00 | 0,70 | 71,65  | 15,48 | 3803,66 |
| 78078,14 | 30,00 | 0,70 | 71,94  | 19,22 | 4063,40 |
| 2051,22  | 30,00 | 0,70 | 79,22  | 0,79  | 2587,85 |
| 4136,91  | 30,00 | 0,70 | 79,32  | 1,51  | 2746,75 |
| 5168,02  | 30,00 | 0,70 | 79,25  | 1,91  | 2706,18 |
| 10275,63 | 30,00 | 0,70 | 79,34  | 3,76  | 2736,18 |
| 19398,23 | 30,00 | 0,70 | 79,51  | 6,53  | 2968,48 |
| 40745,60 | 30,00 | 0,70 | 79,90  | 11,26 | 3618,07 |
| 58658,66 | 30,00 | 0,70 | 80,02  | 14,45 | 4060,57 |
| 77671,13 | 30,00 | 0,70 | 79,77  | 18,21 | 4266,33 |
| 2049,58  | 30,00 | 0,70 | 88,44  | 0,65  | 3174,84 |
| 4121,24  | 30,00 | 0,70 | 88,51  | 1,16  | 3551,96 |
| 5168,02  | 30,00 | 0,70 | 89,16  | 1,60  | 3230,59 |
| 10459,02 | 30,00 | 0,70 | 89,30  | 3,07  | 3402,13 |
| 19724,69 | 30,00 | 0,70 | 88,75  | 5,33  | 3702,08 |
| 40874,23 | 30,00 | 0,70 | 88,98  | 9,22  | 4435,61 |
| 59546,39 | 30,00 | 0,70 | 89,08  | 12,61 | 4723,99 |
| 78674,23 | 30,00 | 0,70 | 89,18  | 16,18 | 4861,94 |
| 2074,76  | 30,00 | 0,70 | 99,66  | 0,71  | 2937,18 |
| 4143,38  | 30,00 | 0,70 | 99,76  | 1,25  | 3303,11 |
| 5152,58  | 30,00 | 0,70 | 99,88  | 1,52  | 3392,50 |
| 10445,69 | 30,00 | 0,70 | 100,05 | 2,95  | 3546,57 |
| 19595,97 | 30,00 | 0,70 | 100,13 | 4,68  | 4182,97 |
| 40745,60 | 30,00 | 0,70 | 100,31 | 8,26  | 4934,86 |

|          |       |      |        |       |         |
|----------|-------|------|--------|-------|---------|
| 59777,94 | 30,00 | 0,70 | 100,32 | 11,31 | 5287,22 |
| 77504,66 | 30,00 | 0,70 | 100,37 | 13,30 | 5827,49 |
| 2132,19  | 50,00 | 0,21 | 72,01  | 1,96  | 1088,61 |
| 4184,00  | 50,00 | 0,21 | 72,59  | 2,89  | 1449,71 |
| 5291,75  | 50,00 | 0,21 | 72,67  | 3,61  | 1466,13 |
| 10733,59 | 50,00 | 0,21 | 72,96  | 7,14  | 1503,03 |
| 19988,66 | 50,00 | 0,21 | 73,20  | 12,03 | 1661,17 |
| 42646,13 | 50,00 | 0,21 | 74,21  | 18,66 | 2285,82 |
| 58617,71 | 50,00 | 0,21 | 74,12  | 23,12 | 2535,17 |
| 78927,01 | 50,00 | 0,21 | 73,88  | 28,42 | 2777,46 |
| 2136,04  | 50,00 | 0,21 | 81,46  | 1,47  | 1450,52 |
| 4181,20  | 50,00 | 0,21 | 81,76  | 2,59  | 1614,77 |
| 5195,46  | 50,00 | 0,21 | 81,68  | 3,35  | 1548,61 |
| 10780,58 | 50,00 | 0,21 | 81,99  | 6,50  | 1657,57 |
| 19912,05 | 50,00 | 0,21 | 82,45  | 11,11 | 1792,95 |
| 42088,39 | 50,00 | 0,21 | 82,91  | 16,68 | 2523,28 |
| 59029,78 | 50,00 | 0,21 | 83,28  | 20,24 | 2916,15 |
| 77938,36 | 50,00 | 0,21 | 83,25  | 24,08 | 3236,02 |
| 2079,90  | 50,00 | 0,21 | 91,03  | 1,28  | 1631,27 |
| 4067,75  | 50,00 | 0,21 | 91,13  | 2,40  | 1691,74 |
| 5081,40  | 50,00 | 0,21 | 91,21  | 3,02  | 1685,25 |
| 10745,07 | 50,00 | 0,21 | 91,76  | 5,84  | 1840,45 |
| 19578,82 | 50,00 | 0,21 | 92,16  | 9,85  | 1986,84 |
| 41662,10 | 50,00 | 0,21 | 92,37  | 15,08 | 2763,06 |
| 59050,33 | 50,00 | 0,21 | 92,73  | 18,48 | 3195,04 |
| 78845,26 | 50,00 | 0,21 | 92,85  | 22,06 | 3573,93 |
| 2064,43  | 50,00 | 0,21 | 100,92 | 0,89  | 2315,37 |
| 4137,51  | 50,00 | 0,21 | 101,03 | 1,93  | 2139,96 |
| 5195,01  | 50,00 | 0,21 | 101,07 | 2,58  | 2011,59 |
| 10480,89 | 50,00 | 0,21 | 101,36 | 4,84  | 2167,29 |
| 19578,82 | 50,00 | 0,21 | 101,73 | 7,48  | 2616,88 |
| 41911,24 | 50,00 | 0,21 | 102,07 | 12,36 | 3390,31 |
| 59741,20 | 50,00 | 0,21 | 102,15 | 16,20 | 3687,53 |
| 79455,52 | 50,00 | 0,21 | 102,15 | 20,07 | 3959,09 |
| 2122,64  | 50,00 | 0,29 | 72,25  | 1,89  | 1125,38 |
| 4151,65  | 50,00 | 0,29 | 72,26  | 3,25  | 1275,59 |
| 5249,57  | 50,00 | 0,29 | 72,33  | 3,98  | 1320,46 |
| 10863,04 | 50,00 | 0,29 | 72,51  | 7,33  | 1482,11 |
| 19783,71 | 50,00 | 0,29 | 72,86  | 12,40 | 1594,84 |
| 42121,24 | 50,00 | 0,29 | 74,03  | 18,91 | 2227,90 |
| 58991,07 | 50,00 | 0,29 | 73,79  | 23,34 | 2527,72 |
| 78455,88 | 50,00 | 0,29 | 74,17  | 27,47 | 2855,83 |
| 2059,79  | 50,00 | 0,29 | 81,55  | 1,55  | 1330,74 |
| 4237,45  | 50,00 | 0,29 | 81,83  | 2,64  | 1606,98 |
| 5150,84  | 50,00 | 0,29 | 81,74  | 3,33  | 1548,30 |
| 10766,51 | 50,00 | 0,29 | 82,04  | 6,41  | 1680,93 |
| 19859,22 | 50,00 | 0,29 | 82,18  | 11,11 | 1787,14 |
| 42063,31 | 50,00 | 0,29 | 83,01  | 16,20 | 2595,83 |
| 58462,87 | 50,00 | 0,29 | 83,28  | 19,50 | 2997,64 |
| 77809,86 | 50,00 | 0,29 | 83,06  | 23,49 | 3312,64 |
| 2093,94  | 50,00 | 0,29 | 91,36  | 1,16  | 1803,12 |
| 4186,31  | 50,00 | 0,29 | 91,49  | 2,38  | 1758,59 |
| 5130,00  | 50,00 | 0,29 | 91,61  | 2,87  | 1789,13 |
| 10750,42 | 50,00 | 0,29 | 91,69  | 5,89  | 1826,18 |

|          |       |      |        |       |
|----------|-------|------|--------|-------|
| 19421,71 | 50,00 | 0,29 | 91,73  | 10,20 |
| 41629,48 | 50,00 | 0,29 | 92,39  | 14,70 |
| 59656,36 | 50,00 | 0,29 | 92,57  | 18,18 |
| 77928,00 | 50,00 | 0,29 | 92,46  | 21,79 |
| 2079,90  | 50,00 | 0,29 | 100,98 | 1,06  |
| 4121,24  | 50,00 | 0,29 | 101,10 | 2,03  |
| 5075,38  | 50,00 | 0,29 | 101,07 | 2,55  |
| 10412,10 | 50,00 | 0,29 | 101,27 | 4,84  |
| 19526,39 | 50,00 | 0,29 | 101,71 | 7,38  |
| 42063,31 | 50,00 | 0,29 | 102,02 | 11,87 |
| 59434,19 | 50,00 | 0,29 | 102,06 | 15,95 |
| 78763,55 | 50,00 | 0,29 | 102,07 | 19,54 |
| 2114,95  | 50,00 | 0,42 | 72,14  | 2,00  |
| 4162,43  | 50,00 | 0,42 | 72,35  | 3,05  |
| 5204,69  | 50,00 | 0,42 | 72,31  | 3,81  |
| 10724,92 | 50,00 | 0,42 | 72,59  | 6,96  |
| 20051,75 | 50,00 | 0,42 | 73,03  | 11,73 |
| 41345,98 | 50,00 | 0,42 | 73,61  | 17,86 |
| 59084,54 | 50,00 | 0,42 | 73,87  | 21,31 |
| 77907,22 | 50,00 | 0,42 | 73,78  | 24,94 |
| 2082,43  | 50,00 | 0,42 | 81,64  | 1,66  |
| 4124,69  | 50,00 | 0,42 | 81,64  | 2,87  |
| 5174,54  | 50,00 | 0,42 | 81,84  | 3,32  |
| 10711,63 | 50,00 | 0,42 | 81,99  | 6,39  |
| 19531,73 | 50,00 | 0,42 | 82,45  | 10,67 |
| 41146,39 | 50,00 | 0,42 | 82,74  | 16,34 |
| 58968,14 | 50,00 | 0,42 | 83,34  | 19,11 |
| 76055,46 | 50,00 | 0,42 | 83,14  | 22,78 |
| 2034,20  | 50,00 | 0,42 | 91,13  | 1,57  |
| 4097,16  | 50,00 | 0,42 | 91,57  | 2,34  |
| 5224,25  | 50,00 | 0,42 | 91,29  | 3,28  |
| 10632,66 | 50,00 | 0,42 | 91,77  | 5,69  |
| 19352,44 | 50,00 | 0,42 | 91,82  | 9,79  |
| 41925,00 | 50,00 | 0,42 | 92,65  | 14,49 |
| 59289,93 | 50,00 | 0,42 | 92,84  | 17,56 |
| 77833,48 | 50,00 | 0,42 | 92,90  | 20,68 |
| 2032,58  | 50,00 | 0,42 | 100,91 | 1,19  |
| 4126,66  | 50,00 | 0,42 | 100,99 | 2,25  |
| 5070,00  | 50,00 | 0,42 | 101,06 | 2,64  |
| 10369,98 | 50,00 | 0,42 | 101,28 | 4,64  |
| 19549,92 | 50,00 | 0,42 | 101,61 | 7,38  |
| 42011,44 | 50,00 | 0,42 | 102,03 | 12,57 |
| 59496,01 | 50,00 | 0,42 | 102,03 | 15,28 |
| 80416,24 | 50,00 | 0,42 | 101,99 | 18,73 |
| 2130,15  | 50,00 | 0,56 | 72,42  | 1,79  |
| 4240,00  | 50,00 | 0,56 | 72,41  | 3,07  |
| 5156,44  | 50,00 | 0,56 | 72,50  | 3,58  |
| 10719,67 | 50,00 | 0,56 | 72,58  | 6,79  |
| 20116,78 | 50,00 | 0,56 | 72,78  | 11,52 |
| 41419,02 | 50,00 | 0,56 | 73,44  | 17,01 |
| 58347,60 | 50,00 | 0,56 | 73,53  | 20,99 |
| 77938,36 | 50,00 | 0,56 | 73,93  | 24,26 |
| 2112,91  | 50,00 | 0,56 | 81,70  | 1,58  |
| 4135,47  | 50,00 | 0,56 | 81,62  | 2,84  |

|         |
|---------|
| 1904,37 |
| 2832,53 |
| 3282,17 |
| 3575,52 |
| 1962,14 |
| 2027,40 |
| 1992,83 |
| 2151,61 |
| 2645,61 |
| 3543,17 |
| 3725,13 |
| 4030,80 |
| 1059,75 |
| 1362,80 |
| 1365,18 |
| 1541,24 |
| 1708,91 |
| 2314,72 |
| 2772,26 |
| 3123,42 |
| 1254,98 |
| 1435,00 |
| 1557,20 |
| 1675,09 |
| 1831,08 |
| 2518,10 |
| 3085,93 |
| 3337,99 |
| 1291,84 |
| 1747,81 |
| 1592,87 |
| 1870,09 |
| 1975,87 |
| 2892,69 |
| 3376,28 |
| 3763,71 |
| 1715,13 |
| 1837,07 |
| 1921,73 |
| 2234,71 |
| 2648,35 |
| 3341,42 |
| 3893,46 |
| 4294,26 |
| 1188,93 |
| 1382,81 |
| 1439,23 |
| 1579,32 |
| 1746,80 |
| 2435,65 |
| 2779,31 |
| 3213,01 |
| 1338,35 |
| 1455,39 |

|          |       |      |        |       |         |
|----------|-------|------|--------|-------|---------|
| 5118,00  | 50,00 | 0,56 | 81,68  | 3,34  | 1530,96 |
| 10771,24 | 50,00 | 0,56 | 81,98  | 6,07  | 1774,85 |
| 19752,70 | 50,00 | 0,56 | 82,27  | 9,86  | 2002,69 |
| 41062,66 | 50,00 | 0,56 | 82,63  | 14,69 | 2795,76 |
| 59086,49 | 50,00 | 0,56 | 82,54  | 18,24 | 3238,54 |
| 77657,81 | 50,00 | 0,56 | 82,74  | 21,52 | 3607,94 |
| 2112,91  | 50,00 | 0,56 | 91,60  | 1,27  | 1665,35 |
| 4151,65  | 50,00 | 0,56 | 91,60  | 2,53  | 1639,55 |
| 5147,63  | 50,00 | 0,56 | 91,64  | 3,07  | 1678,05 |
| 10412,87 | 50,00 | 0,56 | 91,63  | 5,62  | 1853,97 |
| 19439,86 | 50,00 | 0,56 | 92,11  | 8,62  | 2254,90 |
| 42283,21 | 50,00 | 0,56 | 92,49  | 12,79 | 3305,12 |
| 58838,35 | 50,00 | 0,56 | 92,44  | 16,17 | 3638,02 |
| 77190,93 | 50,00 | 0,56 | 92,42  | 19,45 | 3969,57 |
| 2107,26  | 50,00 | 0,56 | 101,12 | 1,17  | 1808,42 |
| 4087,43  | 50,00 | 0,56 | 101,13 | 2,14  | 1912,92 |
| 5240,64  | 50,00 | 0,56 | 101,18 | 2,58  | 2034,87 |
| 10302,27 | 50,00 | 0,56 | 101,37 | 4,06  | 2540,07 |
| 19543,51 | 50,00 | 0,56 | 101,69 | 6,07  | 3217,76 |
| 42053,79 | 50,00 | 0,56 | 101,87 | 10,14 | 4148,67 |
| 59230,61 | 50,00 | 0,56 | 101,85 | 13,25 | 4469,73 |
| 79725,65 | 50,00 | 0,56 | 101,83 | 16,12 | 4945,03 |
| 2078,60  | 50,00 | 0,70 | 72,42  | 1,79  | 1188,93 |
| 4114,29  | 50,00 | 0,70 | 72,41  | 3,07  | 1382,81 |
| 5118,00  | 50,00 | 0,70 | 72,50  | 3,58  | 1439,23 |
| 10754,47 | 50,00 | 0,70 | 72,58  | 6,79  | 1579,32 |
| 20017,03 | 50,00 | 0,70 | 72,78  | 11,52 | 1746,80 |
| 41317,84 | 50,00 | 0,70 | 73,44  | 17,01 | 2435,65 |
| 59082,31 | 50,00 | 0,70 | 73,53  | 20,99 | 2779,31 |
| 76698,93 | 50,00 | 0,70 | 73,93  | 24,26 | 3213,01 |
| 2110,82  | 50,00 | 0,70 | 81,84  | 1,34  | 1579,01 |
| 4207,67  | 50,00 | 0,70 | 81,90  | 2,48  | 1695,06 |
| 5240,28  | 50,00 | 0,70 | 81,82  | 3,14  | 1669,93 |
| 10681,57 | 50,00 | 0,70 | 81,77  | 6,01  | 1778,74 |
| 19859,22 | 50,00 | 0,70 | 82,13  | 9,17  | 2164,55 |
| 41773,26 | 50,00 | 0,70 | 82,44  | 14,16 | 2950,88 |
| 59360,82 | 50,00 | 0,70 | 82,97  | 17,24 | 3442,32 |
| 78294,85 | 50,00 | 0,70 | 82,74  | 21,23 | 3687,94 |
| 2082,43  | 50,00 | 0,70 | 91,71  | 1,39  | 1498,86 |
| 4137,98  | 50,00 | 0,70 | 91,67  | 2,52  | 1641,52 |
| 5156,85  | 50,00 | 0,70 | 91,76  | 2,95  | 1747,98 |
| 10527,22 | 50,00 | 0,70 | 91,81  | 5,33  | 1976,52 |
| 19741,92 | 50,00 | 0,70 | 92,02  | 8,12  | 2432,49 |
| 41984,60 | 50,00 | 0,70 | 92,53  | 12,24 | 3429,39 |
| 58940,93 | 50,00 | 0,70 | 92,53  | 15,64 | 3768,98 |
| 77836,39 | 50,00 | 0,70 | 92,53  | 19,12 | 4070,58 |
| 2088,00  | 50,00 | 0,70 | 101,20 | 1,00  | 2056,00 |
| 4028,00  | 50,00 | 0,70 | 101,23 | 1,70  | 2335,00 |
| 5143,00  | 50,00 | 0,70 | 101,27 | 2,16  | 2389,00 |
| 10277,00 | 50,00 | 0,70 | 101,50 | 3,55  | 2891,00 |
| 19712,00 | 50,00 | 0,70 | 101,65 | 5,28  | 3734,00 |
| 42071,00 | 50,00 | 0,70 | 101,77 | 9,30  | 4523,00 |
| 59071,00 | 50,00 | 0,70 | 101,78 | 12,17 | 4854,00 |
| 79326,00 | 50,00 | 0,70 | 101,79 | 14,80 | 5351,00 |

|          |       |      |        |       |         |
|----------|-------|------|--------|-------|---------|
| 2132,19  | 70,00 | 0,21 | 72,01  | 1,96  | 1088,61 |
| 4184,00  | 70,00 | 0,21 | 72,59  | 2,89  | 1449,71 |
| 5291,75  | 70,00 | 0,21 | 72,67  | 3,61  | 1466,13 |
| 10733,59 | 70,00 | 0,21 | 72,96  | 7,14  | 1503,03 |
| 19988,66 | 70,00 | 0,21 | 73,20  | 12,03 | 1661,17 |
| 42646,13 | 70,00 | 0,21 | 74,21  | 18,66 | 2285,82 |
| 58617,71 | 70,00 | 0,21 | 74,12  | 23,12 | 2535,17 |
| 78927,01 | 70,00 | 0,21 | 73,88  | 28,42 | 2777,46 |
| 2139,71  | 70,00 | 0,21 | 85,05  | 2,30  | 929,65  |
| 4199,70  | 70,00 | 0,21 | 85,61  | 4,69  | 895,09  |
| 5276,35  | 70,00 | 0,21 | 84,79  | 6,47  | 815,08  |
| 11057,40 | 70,00 | 0,21 | 85,35  | 11,36 | 973,34  |
| 19965,73 | 70,00 | 0,21 | 86,33  | 15,29 | 1305,68 |
| 42790,10 | 70,00 | 0,21 | 86,71  | 22,33 | 1916,38 |
| 59686,14 | 70,00 | 0,21 | 86,86  | 26,84 | 2223,94 |
| 78232,49 | 70,00 | 0,21 | 87,70  | 33,47 | 2337,46 |
| 2168,51  | 70,00 | 0,21 | 94,50  | 2,82  | 768,57  |
| 4111,42  | 70,00 | 0,21 | 94,86  | 4,46  | 921,77  |
| 5103,22  | 70,00 | 0,21 | 95,07  | 5,20  | 981,50  |
| 10724,35 | 70,00 | 0,21 | 95,56  | 9,44  | 1136,20 |
| 19724,69 | 70,00 | 0,21 | 95,82  | 13,56 | 1454,84 |
| 41545,24 | 70,00 | 0,21 | 96,38  | 19,52 | 2128,69 |
| 58856,41 | 70,00 | 0,21 | 96,74  | 23,99 | 2453,79 |
| 77954,43 | 70,00 | 0,21 | 97,08  | 28,49 | 2736,41 |
| 2103,41  | 70,00 | 0,21 | 103,99 | 1,90  | 1109,24 |
| 4218,56  | 70,00 | 0,21 | 104,11 | 3,57  | 1181,03 |
| 5210,38  | 70,00 | 0,21 | 104,26 | 4,27  | 1219,96 |
| 10668,87 | 70,00 | 0,21 | 104,47 | 7,19  | 1483,64 |
| 19917,53 | 70,00 | 0,21 | 104,96 | 9,67  | 2059,34 |
| 42422,01 | 70,00 | 0,21 | 105,20 | 16,64 | 2548,80 |
| 59686,14 | 70,00 | 0,21 | 105,58 | 20,74 | 2878,45 |
| 79431,69 | 70,00 | 0,21 | 105,59 | 25,23 | 3148,87 |
| 2099,57  | 70,00 | 0,29 | 76,63  | 2,40  | 874,90  |
| 4202,23  | 70,00 | 0,29 | 76,69  | 5,22  | 804,45  |
| 5261,34  | 70,00 | 0,29 | 76,68  | 6,77  | 777,16  |
| 10871,29 | 70,00 | 0,29 | 77,04  | 12,42 | 874,97  |
| 19930,23 | 70,00 | 0,29 | 77,28  | 17,94 | 1111,04 |
| 42481,94 | 70,00 | 0,29 | 77,44  | 27,52 | 1543,65 |
| 59383,86 | 70,00 | 0,29 | 78,02  | 55,99 | 1060,65 |
| 78166,91 | 70,00 | 0,29 | 79,99  | 99,22 | 787,84  |
| 2114,69  | 70,00 | 0,29 | 84,93  | 2,97  | 713,03  |
| 4199,70  | 70,00 | 0,29 | 84,68  | 5,13  | 819,15  |
| 5153,65  | 70,00 | 0,29 | 85,42  | 5,72  | 900,83  |
| 10922,63 | 70,00 | 0,29 | 85,80  | 10,48 | 1042,37 |
| 19905,67 | 70,00 | 0,29 | 86,10  | 15,05 | 1322,86 |
| 42327,44 | 70,00 | 0,29 | 86,39  | 21,40 | 1978,24 |
| 59830,76 | 70,00 | 0,29 | 86,74  | 26,78 | 2234,40 |
| 80155,47 | 70,00 | 0,29 | 87,19  | 33,24 | 2411,55 |
| 2073,01  | 70,00 | 0,29 | 94,73  | 2,61  | 795,22  |
| 4132,95  | 70,00 | 0,29 | 94,83  | 4,38  | 943,13  |
| 5225,32  | 70,00 | 0,29 | 95,01  | 5,32  | 981,84  |
| 10888,21 | 70,00 | 0,29 | 95,18  | 9,52  | 1143,69 |
| 19754,64 | 70,00 | 0,29 | 95,71  | 13,17 | 1499,97 |
| 41394,14 | 70,00 | 0,29 | 96,22  | 19,21 | 2154,33 |

|          |       |      |        |       |         |
|----------|-------|------|--------|-------|---------|
| 58865,41 | 70,00 | 0,29 | 96,29  | 23,42 | 2513,36 |
| 76813,34 | 70,00 | 0,29 | 96,61  | 27,26 | 2818,22 |
| 2082,43  | 70,00 | 0,29 | 103,98 | 1,96  | 1064,18 |
| 3964,04  | 70,00 | 0,29 | 104,20 | 3,33  | 1191,47 |
| 5162,47  | 70,00 | 0,29 | 104,24 | 3,98  | 1297,53 |
| 10720,31 | 70,00 | 0,29 | 104,49 | 7,01  | 1528,23 |
| 19923,90 | 70,00 | 0,29 | 104,75 | 9,73  | 2048,71 |
| 42472,42 | 70,00 | 0,29 | 105,11 | 16,16 | 2628,16 |
| 59292,37 | 70,00 | 0,29 | 105,32 | 20,62 | 2875,81 |
| 78958,76 | 70,00 | 0,29 | 105,32 | 24,66 | 3201,43 |
| 2092,13  | 70,00 | 0,42 | 75,87  | 2,92  | 715,44  |
| 4162,11  | 70,00 | 0,42 | 75,90  | 5,08  | 819,81  |
| 5177,73  | 70,00 | 0,42 | 76,23  | 5,93  | 872,83  |
| 10905,71 | 70,00 | 0,42 | 76,41  | 10,54 | 1034,64 |
| 20029,77 | 70,00 | 0,42 | 76,78  | 14,94 | 1340,28 |
| 42619,30 | 70,00 | 0,42 | 77,04  | 22,08 | 1930,09 |
| 59534,91 | 70,00 | 0,42 | 77,62  | 27,17 | 2191,55 |
| 78382,16 | 70,00 | 0,42 | 78,08  | 51,18 | 1531,52 |
| 2050,06  | 70,00 | 0,42 | 85,32  | 2,57  | 798,33  |
| 4148,35  | 70,00 | 0,42 | 85,19  | 4,65  | 892,49  |
| 5168,02  | 70,00 | 0,42 | 85,35  | 5,47  | 943,98  |
| 10659,55 | 70,00 | 0,42 | 85,43  | 9,97  | 1068,79 |
| 19625,92 | 70,00 | 0,42 | 85,76  | 14,50 | 1353,58 |
| 40745,60 | 70,00 | 0,42 | 86,13  | 20,83 | 1956,18 |
| 59109,59 | 70,00 | 0,42 | 86,26  | 25,51 | 2317,01 |
| 79180,04 | 70,00 | 0,42 | 86,77  | 29,22 | 2709,34 |
| 2162,47  | 70,00 | 0,42 | 94,74  | 2,77  | 780,51  |
| 4106,04  | 70,00 | 0,42 | 94,90  | 4,36  | 941,90  |
| 5067,28  | 70,00 | 0,42 | 95,09  | 5,09  | 995,74  |
| 10664,23 | 70,00 | 0,42 | 95,08  | 9,32  | 1143,95 |
| 19479,34 | 70,00 | 0,42 | 95,62  | 12,90 | 1510,53 |
| 42096,16 | 70,00 | 0,42 | 95,96  | 19,24 | 2188,47 |
| 58959,09 | 70,00 | 0,42 | 96,22  | 23,26 | 2534,66 |
| 76464,80 | 70,00 | 0,42 | 96,36  | 26,85 | 2847,74 |
| 2131,96  | 70,00 | 0,42 | 103,99 | 2,02  | 1057,42 |
| 4111,42  | 70,00 | 0,42 | 104,15 | 3,43  | 1200,28 |
| 5120,78  | 70,00 | 0,42 | 104,13 | 4,15  | 1233,25 |
| 10548,43 | 70,00 | 0,42 | 104,39 | 6,74  | 1564,35 |
| 19835,55 | 70,00 | 0,42 | 104,63 | 9,33  | 2125,76 |
| 42538,42 | 70,00 | 0,42 | 105,00 | 15,69 | 2711,96 |
| 57903,68 | 70,00 | 0,42 | 105,04 | 19,96 | 2901,50 |
| 78671,44 | 70,00 | 0,42 | 105,10 | 24,32 | 3234,19 |
| 2095,72  | 70,00 | 0,56 | 75,67  | 2,72  | 770,26  |
| 4135,47  | 70,00 | 0,56 | 75,84  | 4,59  | 901,17  |
| 5225,32  | 70,00 | 0,56 | 75,97  | 5,57  | 937,36  |
| 10905,71 | 70,00 | 0,56 | 76,14  | 9,84  | 1108,80 |
| 19881,96 | 70,00 | 0,56 | 76,37  | 14,42 | 1379,14 |
| 42532,39 | 70,00 | 0,56 | 76,74  | 20,93 | 2031,93 |
| 59715,93 | 70,00 | 0,56 | 77,14  | 25,03 | 2385,77 |
| 77154,24 | 70,00 | 0,56 | 77,55  | 30,80 | 2504,77 |
| 2114,69  | 70,00 | 0,56 | 85,03  | 3,41  | 619,55  |
| 4164,62  | 70,00 | 0,56 | 85,08  | 5,32  | 782,64  |
| 5198,28  | 70,00 | 0,56 | 85,12  | 6,35  | 818,73  |
| 10857,90 | 70,00 | 0,56 | 85,41  | 9,82  | 1105,32 |

|          |       |      |        |       |         |
|----------|-------|------|--------|-------|---------|
| 19777,36 | 70,00 | 0,56 | 85,54  | 13,74 | 1439,77 |
| 41251,02 | 70,00 | 0,56 | 85,92  | 19,28 | 2139,03 |
| 59168,85 | 70,00 | 0,56 | 86,44  | 23,65 | 2501,81 |
| 77938,36 | 70,00 | 0,56 | 86,35  | 27,04 | 2882,38 |
| 2091,88  | 70,00 | 0,56 | 95,04  | 2,44  | 856,68  |
| 4164,62  | 70,00 | 0,56 | 95,04  | 4,13  | 1007,47 |
| 5195,46  | 70,00 | 0,56 | 95,16  | 4,92  | 1054,93 |
| 10763,18 | 70,00 | 0,56 | 95,38  | 8,30  | 1296,23 |
| 19952,16 | 70,00 | 0,56 | 95,59  | 11,70 | 1705,30 |
| 42677,72 | 70,00 | 0,56 | 95,92  | 18,05 | 2363,96 |
| 59404,45 | 70,00 | 0,56 | 95,90  | 22,00 | 2700,16 |
| 77467,63 | 70,00 | 0,56 | 96,04  | 25,97 | 2982,72 |
| 2093,63  | 70,00 | 0,56 | 104,08 | 1,96  | 1066,07 |
| 4151,29  | 70,00 | 0,56 | 104,12 | 3,43  | 1210,36 |
| 5150,41  | 70,00 | 0,56 | 104,19 | 4,08  | 1261,77 |
| 10706,97 | 70,00 | 0,56 | 104,23 | 7,43  | 1440,39 |
| 19911,11 | 70,00 | 0,56 | 104,64 | 10,48 | 1900,64 |
| 42146,31 | 70,00 | 0,56 | 104,99 | 16,69 | 2524,54 |
| 58867,92 | 70,00 | 0,56 | 104,99 | 20,30 | 2900,21 |
| 77292,49 | 70,00 | 0,56 | 104,96 | 23,82 | 3245,03 |
| 2106,96  | 70,00 | 0,70 | 75,53  | 4,14  | 509,19  |
| 4202,23  | 70,00 | 0,70 | 75,73  | 5,76  | 730,03  |
| 5061,77  | 70,00 | 0,70 | 75,59  | 6,47  | 782,59  |
| 10996,35 | 70,00 | 0,70 | 75,84  | 9,99  | 1100,84 |
| 19684,78 | 70,00 | 0,70 | 76,00  | 13,63 | 1444,37 |
| 38976,44 | 70,00 | 0,70 | 76,00  | 19,04 | 2046,64 |
| 59839,95 | 70,00 | 0,70 | 76,65  | 24,00 | 2493,63 |
| 78589,82 | 70,00 | 0,70 | 77,18  | 28,80 | 2728,90 |
| 2089,77  | 70,00 | 0,70 | 84,52  | 3,54  | 590,35  |
| 4172,54  | 70,00 | 0,70 | 84,79  | 4,92  | 847,36  |
| 5183,38  | 70,00 | 0,70 | 84,68  | 5,87  | 883,69  |
| 10983,47 | 70,00 | 0,70 | 85,11  | 9,22  | 1191,60 |
| 19498,52 | 70,00 | 0,70 | 85,32  | 12,28 | 1587,43 |
| 42173,20 | 70,00 | 0,70 | 85,66  | 18,75 | 2248,94 |
| 59582,85 | 70,00 | 0,70 | 85,71  | 22,78 | 2615,53 |
| 77708,01 | 70,00 | 0,70 | 85,67  | 26,87 | 2891,91 |
| 2076,49  | 70,00 | 0,70 | 94,86  | 2,63  | 788,52  |
| 4186,31  | 70,00 | 0,70 | 95,10  | 4,06  | 1030,99 |
| 5150,41  | 70,00 | 0,70 | 95,31  | 4,71  | 1093,65 |
| 10724,35 | 70,00 | 0,70 | 95,24  | 8,32  | 1288,40 |
| 19719,26 | 70,00 | 0,70 | 95,66  | 11,41 | 1728,33 |
| 42582,85 | 70,00 | 0,70 | 96,10  | 17,44 | 2441,51 |
| 58383,56 | 70,00 | 0,70 | 95,87  | 21,55 | 2709,34 |
| 76576,03 | 70,00 | 0,70 | 95,99  | 25,60 | 2991,37 |
| 2104,82  | 70,00 | 0,70 | 104,23 | 1,93  | 1091,49 |
| 4026,52  | 70,00 | 0,70 | 104,31 | 2,96  | 1362,41 |
| 5108,76  | 70,00 | 0,70 | 104,37 | 3,44  | 1483,83 |
| 10616,91 | 70,00 | 0,70 | 104,57 | 5,20  | 2041,78 |
| 19602,37 | 70,00 | 0,70 | 104,67 | 7,75  | 2529,18 |
| 42513,24 | 70,00 | 0,70 | 104,88 | 13,68 | 3107,77 |
| 59768,78 | 70,00 | 0,70 | 104,88 | 17,58 | 3400,10 |
| 77894,00 | 70,00 | 0,70 | 104,91 | 21,16 | 3681,81 |

## Résultats expérimentaux de h pour CMC dans un plan d'expérience complet ( $X_{MS}$ 1 et 2 %).

| $\phi$ kW.m <sup>-2</sup> | $X_{MS}$ | $\Gamma$ kg/m.s | h W/m <sup>2</sup> .°C |
|---------------------------|----------|-----------------|------------------------|
| 2,07                      | 1        | 0,7             | 1138,65                |
| 4,2                       | 1        | 0,7             | 1335,41                |
| 5,13                      | 1        | 0,7             | 1283,09                |
| 10,76                     | 1        | 0,7             | 1448,42                |
| 19,85                     | 1        | 0,7             | 1442,62                |
| 41,88                     | 1        | 0,7             | 2132,49                |
| 59,06                     | 1        | 0,7             | 2706,42                |
| 78,82                     | 1        | 0,7             | 3346,27                |
| 2,14                      | 1        | 0,56            | 1275,01                |
| 4,28                      | 1        | 0,56            | 1335,57                |
| 5,17                      | 1        | 0,56            | 1313,17                |
| 10,8                      | 1        | 0,56            | 1384,77                |
| 19,93                     | 1        | 0,56            | 1472,06                |
| 42,06                     | 1        | 0,56            | 2121,28                |
| 59,29                     | 1        | 0,56            | 2700,62                |
| 78,79                     | 1        | 0,56            | 3627,81                |
| 2,1                       | 1        | 0,42            | 1174,72                |
| 4,12                      | 1        | 0,42            | 1184,2                 |
| 5,09                      | 1        | 0,42            | 1251,16                |
| 10,76                     | 1        | 0,42            | 1357,54                |
| 19,84                     | 1        | 0,42            | 1504                   |
| 42,09                     | 1        | 0,42            | 2301,8                 |
| 58,8                      | 1        | 0,42            | 2892,99                |
| 78,11                     | 1        | 0,42            | 3595,82                |
| 2,1                       | 1        | 0,29            | 1025,67                |
| 5,16                      | 1        | 0,29            | 1251,61                |
| 10,81                     | 1        | 0,29            | 1254,03                |
| 19,86                     | 1        | 0,29            | 1448,04                |
| 42,04                     | 1        | 0,29            | 2633,01                |
| 58,82                     | 1        | 0,29            | 3172,53                |
| 2,11                      | 2        | 0,7             | 1015,39                |
| 4,17                      | 2        | 0,7             | 1020,52                |
| 5,19                      | 2        | 0,7             | 1025,57                |
| 10,87                     | 2        | 0,7             | 1185,54                |
| 20,16                     | 2        | 0,7             | 1418,82                |
| 41,94                     | 2        | 0,7             | 2378,97                |
| 2,18                      | 2        | 0,56            | 1183,17                |
| 4,16                      | 2        | 0,56            | 1133,38                |
| 5,29                      | 2        | 0,56            | 1199,16                |
| 10,71                     | 2        | 0,56            | 1278,4                 |
| 19,62                     | 2        | 0,56            | 1456,53                |

## Résumé :

Le coefficient de transfert de chaleur est nécessaire pour concevoir et dimensionner un évaporateur utilisé pour concentrer un liquide, tel que rencontré couramment dans les industries alimentaires. Le coefficient de transfert de chaleur le plus variable et le plus incertain est du côté produit, entre paroi et liquide, noté «  $h$  ». Il varie à la fois avec les propriétés thermo-physiques du liquide traité ( $\eta_L$ ,  $\sigma_L$ ,  $\lambda_L$ ,  $\rho_L$ ,  $C_{pL}$ ,  $\omega$ , ...) et avec les paramètres du procédé (type d'évaporateur,  $\phi$  ou  $\Delta\theta$ ,  $\Gamma$  ( $\delta$ ),  $P$ , rugosité de la surface, encrassement, etc), ces grandeurs étant définies dans le texte. Mais  $h$  est aussi lié au régime d'ébullition (nucléée ou non nucléée), et pour les évaporateurs de type « flot tombant », au régime d'écoulement laminaire ou turbulent, selon le nombre de Reynolds en film  $Re_f$ .

Nous avons étudié le cas des évaporateurs « à flot tombant », très utilisés dans les industries alimentaires pour concentrer le lait et les produits laitiers, les jus sucrés, les jus de fruits et légumes. L'objectif de notre travail était de définir une méthode fiable et économique pour évaluer a priori le coefficient de transfert de chaleur  $h$  côté liquide en ébullition, dans un évaporateur flot tombant.

La première partie de la thèse a été consacrée à l'analyse bibliographique, qui a révélé une grande incertitude actuelle dans la prévision de  $h$ , sur la base des formules de la littérature, et des paramètres descripteurs proposés. La deuxième partie de la thèse a été de concevoir et construire un pilote utilisable pour estimer  $h$ , dans des conditions stationnaires connues et reproductibles. Dans la troisième partie, on présente les résultats et commente les lois de variations de  $h$  en fonction de la concentration de matière sèche du liquide  $X_{MS}$ , de la température d'ébullition de liquide  $\theta_L$  (ou  $P$ ), du flux de chaleur  $\phi$  ou ( $\Delta\theta$ ), et du débit massique de liquide par unité de périmètre de tube  $\Gamma$ , pour des propriétés de surface de chauffe fixées (ici, paroi en acier inoxydable poli  $Rs \approx 0,8 \mu m$ ). On commente l'effet sur  $h$  de chaque variable isolément, les autres étant maintenues constantes, ce qui confirme l'importance de la transition du régime non-nucléé au régime nucléé, cette transition variant avec la nature du liquide, sa concentration, et le flux de chaleur.

On a montré la possibilité de modéliser un produit donné dans l'ensemble du domaine expérimental, où tous les paramètres peuvent varier simultanément, avec peu de coefficients, selon deux types d'équations (polynomiale et puissance). On a comparé le cas d'un liquide Newtonien (jus sucré) et non-Newtonien (solution de CMC dans l'eau). On a aussi observé le débit de mouillage critique  $\Gamma_{cri}$  et ses lois de variation. On a aussi démontré la possibilité de simplifier le plan d'expérience, aussi bien pour les liquides Newtoniens que non-Newtoniens, tout en gardant un coefficient de corrélation satisfaisant dans le domaine  $\Gamma > \Gamma_{cri}$ , cette modélisation pouvant servir de base de données produit pour l'ingénierie.

Mots clefs : coefficient de transfert de chaleur - ébullition - évaporateur à flot tombant - liquide alimentaire - fluide Newtonien - fluide non Newtonien – ébullition nucléée.

## Abstract:

The heat transfer coefficient value is necessary to calculate the heat exchange surface when designing an evaporator, as currently used to concentrate liquids in food industry. The boiling heat transfer coefficient on the liquid side ( $h$ ) is the most uncertain and: it depends on the liquid thermo-physical properties ( $\eta_L$ ,  $\sigma_L$ ,  $\lambda_L$ ,  $\rho_L$ ,  $C_{pL}$ , ...) as well as on the process conditions (type of evaporator,  $\phi$  or  $\Delta\theta$ ,  $\Gamma$  ( $\delta$ ),  $P$ , surface roughness, fouling, etc). Also,  $h$  depends on the boiling regime (non- nucleate or nucleate) and on the flow regime (laminar or turbulent) according to the film Reynolds number in falling film evaporators.

The objective of our work is to define an economical and robust method to estimate  $h$  in a falling film evaporator, which is common in food industry for concentrating fruit juice, milk and sugar solutions.

The first section of our study was a bibliographic analysis which revealed the important dispersion among the  $h$  values calculated from the formulas cited in literature.

The second section was to design and construct a laboratory scale falling film evaporator (pilot) used to estimate  $h$  at stationary parameters conditions.

The third section was to describe the results and variation laws of  $h$  versus the liquid dry matter concentration  $X_{MS}$ , the boiling temperature  $\theta_L$ , the heat flux  $\phi$  or temperature gap  $\Delta\theta$  and mass flow rate per unit of perimeter length  $\Gamma$  (with describing the critical mass flow for some solutions) noted that the nature of heating surface is kept constant during our work. We described the effect of each variable separately on  $h$ , where the other variables being kept constant. Also we studied the transition from non nucleate regime to nucleate regime, which varied with the nature of liquid and the liquid concentration.

Finally, we presented the experimental models for  $h = f(X_{MS}, \theta_L, \phi, \Gamma)$  for a Newtonian liquid (sugar solution) and non-Newtonian solution (CMC) that may be used for industrial evaporator design after their validation. We have also proposed a method for the simplification of the experimental design.

Key words: heat transfer coefficient- boiling (non nucleate and nucleate) - falling film evaporator- food liquid- Newtonian and non-Newtonian liquid.