

SIMULATION NUMERIQUE DE LA DENATURATION CHAUDE DE LA BLG

L'étude numérique présentée ici et validée expérimentalement montre que seule la prise en compte du couplage entre l'écoulement, les transferts de chaleur et les mécanismes de dénaturation de la BLG permet d'obtenir des résultats fiables si l'on souhaite modéliser la formation de dépôt d'origine protéique.

2.4.1 Présentation de l'étude numérique de la dénaturation de la BLG

Même si beaucoup d'études numériques ont été menées jusqu'à maintenant, aucune ne s'est attachée à montrer la validité des modèles cinétiques présentés dans le chapitre précédent par une comparaison des résultats obtenus au moyen de la mécanique des fluides numérique avec des mesures expérimentales du taux de dénaturation de la BLG dans un échangeur réel. Chantoiseau et al. (2012) ont montré l'importance de coupler les effets dus à l'écoulement du fluide avec les transferts de chaleur pour déterminer la dénaturation de la BLG. Il est important de tenir compte de l'effet de la distribution des temps de séjour et des températures dans les installations pour comprendre les transformations qui sont à l'origine de la formation des dépôts. De nombreuses études numériques ont été réalisées pour tenter de simuler numériquement les phénomènes physiques qui ont lieu dans les échangeurs de chaleur. Malgré la progression constante des performances des calculateurs, la prise en compte de toutes les échelles de turbulence par la méthode de résolution numérique directe à l'échelle d'un échangeur de chaleur n'est pas encore possible. La solution actuelle consiste à utiliser des modèles de turbulence qui évitent de résoudre toutes les échelles de turbulence et permettent ainsi d'obtenir des résultats dans des délais de calculs raisonnables sur une simple station de travail. Dans une synthèse bibliographique concernant les modèles utilisés pour les échangeurs de chaleur, Jun et Puri (2005a) ont conclu que les puissances de calcul étaient insuffisantes à cette époque pour simuler numériquement l'encrassement de l'ensemble d'un échangeur de chaleur en 3 dimensions. Une autre difficulté concerne la fiabilité des modèles de turbulence adaptés uniquement à des conditions particulières. Freund et Kabelac (2010) ont montré que les modèles de turbulence sous-estimaient généralement les coefficients de transfert de chaleur. Devant ces difficultés, beaucoup de travaux se sont limités à simuler uniquement un canal ou une partie de canal (Grijspeerd, Hazarika, et Vucinic, 2003) ou à travailler en régime laminaire sur un canal (Jun et Puri, 2005b).

L'objectif des travaux décrits ici était de montrer qu'une étude de MFN (Mécanique des Fluides Numérique) pouvait correctement simuler la dénaturation chaude de la BLG dans un échangeur de chaleur. Dans cette étude numérique, le profil de température est imposé à la paroi

des canaux afin de minimiser la sous-estimation des coefficients de transfert de chaleur par les modèles de turbulence. Le domaine d'étude correspond aux canaux du côté produit modélisés en 2 dimensions. Cela ne constitue pas une limitation car la géométrie des plaques étudiées (description Tableau 4) génèrent un écoulement bidimensionnel (Leuliet, 1988). Une série d'expérimentations a été réalisée pour valider le modèle qui couple les phénomènes hydrodynamiques aux transferts de chaleur et aux réactions chimiques correspondants à la transformation de la BLG. La simulation a été validée par comparaison avec les mesures expérimentales de perte de pression, de température et de niveau de dénaturation de la BLG. Les résultats montrent que les outils logiciels de MFN sont capables de simuler avec précision les transformations de produit alimentaire qui ont lieu dans un ECP.

2.4.2 Méthodologie expérimentale à l'échelle pilote

Un ECP de type V7 (Vicarb) est utilisé avec un canal par passe à contrecourant. Les corrugations des plaques perpendiculaires au sens de l'écoulement génèrent un écoulement bidimensionnel. L'ECP comporte 10 canaux pour le traitement du produit A et 8 canaux pour le traitement d'un deuxième produit B. Les débits de circulation varient de 100 à 400 L/h avec une pression à la sortie de l'ECP maintenue constante à la valeur de 2 bars. En fonction de la température d'entrée souhaitée, le produit peut être préchauffé dans un ECP ou un échangeur de chaleur tubulaire à passage de courant.

La solution de protéine notée A est composée d'un isolat de protéine de lactosérum de lait (Biopure, Davisco, 89 % p/p de BLG) dissout dans de l'eau osmosée à une concentration de 6 % p/p et d'une quantité connue de calcium (CaCl_2 , Prolabo, 132 mg/L). La solution B est composée d'un concentré de protéines laitières (Promilk 852 FP1, IDI SAS, 0,72 % p/p) et d'ultrafiltrat de lait (Lactepi 452, EPI INGREDIENTS, 5 % p/p) dissout dans de l'eau osmosée. La concentration en calcium de la solution B varie de 120 à 135 mg/L. On considère que les propriétés physiques des produits A et B sont identiques à celle de l'eau (Petit et al., 2013). La dépendance thermique des propriétés physiques est présentée dans le tableau suivant :

Tableau 5. Dépendance thermique des propriétés physiques des solutions A et B. La température T est exprimée en degré Celsius (Leuliet, 1988).

Viscosité (Pa.s)	T < 20°C
	$\log_{10}(\mu) = \frac{1301}{998,33 + 8,155(T - 20) + 0,00585(T - 20)^2} - 4,30233$
	T ≥ 20°C

$$\log_{10}(\mu) = \frac{-1,3272(T - 20) - 0,001053(T - 20)^2}{T + 105} - 2,9996$$

Conductivité thermique (W.m ⁻¹ .K ⁻¹)	$k = 0,578 + 0,00148T - 0,00000429T^2$
Masse volumique (kg.m ⁻³)	$\rho = 1001,0 - 0,09084T - 0,003416T^2$
Chaleur spécifique (W.kg ⁻¹ .K ⁻¹)	$C_p = 4199 - 0,964T + 0,0107T^2$

Les niveaux de dénaturation de la BLG sont mesurés à l'entrée et à la sortie de l'ECP. Les échantillons sont prélevés dans des tubes à essai pré-remplis avec de l'eau glacée pour arrêter rapidement la dénaturation de la BLG. Le niveau de dénaturation est défini comme suit :

$$DL = 1 - \frac{S_{\text{sortie}}}{S_{\text{entrée}}} \quad \text{Équation 37}$$

$S_{\text{entrée}}$ et S_{sortie} sont respectivement la concentration en BLG soluble à l'entrée et la sortie de l'ECP. La mesure de la concentration en BLG soluble est réalisée par HPLC. La méthode est décrite de manière détaillée par Petit et al. (2011).

Les produits A et B sont soumis à différentes conditions expérimentales. Concernant le produit A, la température d'entrée varie de 50 à 70 °C avec une augmentation de température qui varie de 15 à 35 °C. Les débits du produit et du fluide secondaire varient de 150 à 300 L/h. Les 19 expérimentations sont présentées dans le Tableau 6. A la température moyenne entre l'entrée et la sortie de l'ECP, le nombre de Reynolds est compris entre 1150 à 2750. Le régime est turbulent puisque le régime de turbulence commence à partir d'un Reynolds supérieur à 260 (Leuliet, 1988).

Tableau 6. Conditions expérimentales utilisées pour le produit A.

Test	Température entrée (°C)	Température sortie (°C)	Débit produit (L/h)	Débit eau chaude (L/h)	Niveau de dénaturation (%)
#1	60,0	84,1	142	159	89,0
#2	69,9	94,6	149	152	97,3
#3	48,4	74,5	148	157	66,9
#4	60,3	85,3	302	296	82,5
#5	60,7	85,0	204	201	84,7
#7	59,6	85,6	300	587	87,4
#8	50,3	85,4	152	157	83,5
#9	70,9	85,4	148	154	91,3
#10	65,6	89,3	153	155	94,5
#11	54,9	80,3	152	151	80,2
#12	61,0	85,9	174	174	87,7
#13	60,5	84,7	251	252	83,4
#14	61,1	85,6	302	391	83,5
#15	55,0	84,5	151	168	87,8
#16	64,9	84,7	152	160	88,5
#17	60,3	84,9	146	160	91,7
#19	59,2	84,4	202	206	87,2
#21	60,5	84,6	154	158	84,6
#24	61,4	85,3	153	160	82,1

Tableau 7. Conditions expérimentales appliquées au produit B

Test	Température entrée (°C)	Température sortie (°C)	Débit produit (L/h)	Nombre de Reynolds	Niveau de dénaturation (%)
#1b	25,0	96,3	142	1091	63,3
#2b	24,1	96,5	200,5	1532	45,9
#3b	21,1	95,7	299,2	2224	21,7
#4b	23,5	95,5	397	2999	13,6
#5b	20,8	97,2	107,3	805	65
#6b	20,9	97,5	202	1519	50
#7b	24,1	96,5	401,1	3066	17
#8b	24,2	97,5	296,9	2287	33

Pour le produit B, la température d'entrée est maintenue constante à 22 °C avec une température de sortie de 96 °C. Le débit d'eau chaude est fixé à 1000 L/h et le débit de produit varie de 100 à 400 L/h. Ces conditions décrites dans le Tableau 7 permettent d'obtenir un niveau de dénaturation qui varie de 17 à 65 % alors que pour le produit A, ce niveau est toujours supérieur à 80 %. Le régime est turbulent pour toutes les expérimentations.

Les paramètres cinétiques du modèle simplifié correspondant à la dénaturation de la BLG ont été déterminés en laboratoire pour les produits A et B et sont présentés dans le Tableau 8. La méthodologie utilisée pour mesurer ces paramètres est décrite dans Petit et al. (2011).

Tableau 8. Paramètres de la cinétique réactionnelle de dénaturation de la BLG.

		Produit A	Produit B
Dépliement	E_A (kJ/mol)	276,3	242,6
	k_0 ($\text{g}^{1-n} \cdot \text{L}^{n-1} \cdot \text{s}^{-1}$)	$3,42 \times 10^{40}$	$1,08 \times 10^{33}$
	N	1,5	1,5
Agrégation	E_A (kJ/mol)	79,7	95,9
	k_0 ($\text{g}^{1-n} \cdot \text{L}^{n-1} \cdot \text{s}^{-1}$)	$3,25 \times 10^9$	$2,12 \times 10^{11}$
	N	2	2

2.4.3 Présentation du modèle numérique

Le logiciel commercial ANSYS Fluent 14 qui utilise la méthode des volumes finis a été mis en œuvre pour résoudre les équations de Navier-Stokes en utilisant un modèle de turbulence ainsi que le modèle de réactions chimiques permettant d'obtenir la concentration de la BLG dans les états N, U ou A. Les températures sont imposées à la frontière du domaine. Ces températures de paroi côté produit ont été mesurées à l'aide de thermocouples insérés dans l'échangeur lors des expérimentations. Cela évite de résoudre numériquement le côté chaud de l'échangeur, ce qui doublerait la taille du domaine et ainsi le nombre de cellules or la structure de l'écoulement du fluide secondaire n'a pas d'intérêt pour atteindre les objectifs fixés. Le nombre de cellules permettant le maillage du domaine présenté en Figure 18 est de 1 140 000. Ce nombre de cellules présente le meilleur compromis entre temps de calcul et précision du résultat. Un nombre inférieur de cellules est insuffisant pour obtenir des résultats précis alors que les tests avec 2 000 000 de cellules n'améliorent pas nettement le résultat.

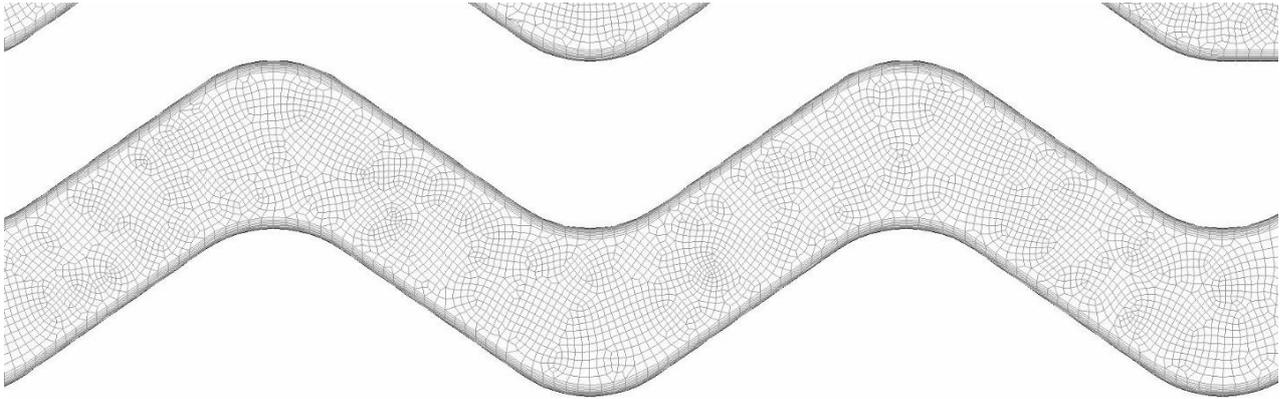


Figure 18. Maillage du premier canal à l'entrée de l'ECP.

De nombreux modèles de turbulence permettent de simuler correctement les écoulements en donnant des résultats proches des résultats expérimentaux (Bhutta et al., 2012). Le modèle $k-\epsilon$ a des avantages malgré ses limites connues. Il permet d'obtenir une convergence rapide des calculs. Le modèle « shear stress transport $k-\omega$ » apporte de nombreuses améliorations vis-à-vis du modèle $k-\epsilon$ mais nécessite plus de temps de calcul. Ces deux modèles ont été testés et comparés aux valeurs expérimentales à l'aide des courbes de frottement de l'ECP obtenues expérimentalement.

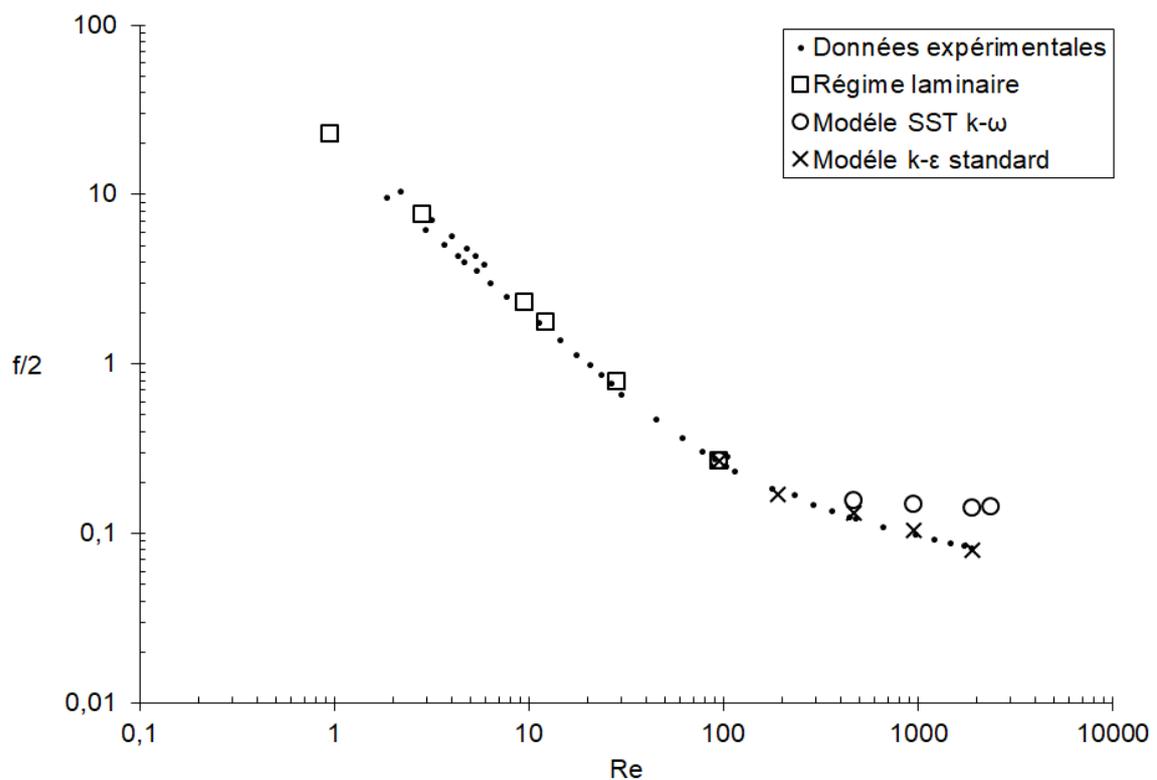


Figure 19. Courbe de frottement obtenu par la mesure et le calcul numérique.

Leuliet (1988) a montré que, pour le type de plaques V7 utilisé, le régime transitionnel commence pour un nombre de Reynolds de 7 et le régime devient pleinement turbulent à partir de 260. Le régime est turbulent dans les conditions de cette étude. Pour les conditions expérimentales étudiées, le modèle k- ϵ donne des résultats proches des mesures. C'est ce modèle qui sera utilisé dans notre cas. Les expérimentations décrites dans les Tableau 6 et Tableau 7 ont toutes été reproduites par calcul.

2.4.4 Résultats obtenus et validation de l'étude numérique

Un des intérêts de la simulation numérique des écoulements est qu'elle va fournir beaucoup plus d'informations que par l'expérimentation. Elle permet d'accéder aux vitesses locales ainsi qu'aux champs de température. La Figure 20 présente une cartographie des températures au sein de l'échangeur à plaques. La température n'évolue pas de manière homogène et les gradients de température varient tout au long des parois en fonction des conditions locales d'écoulement.

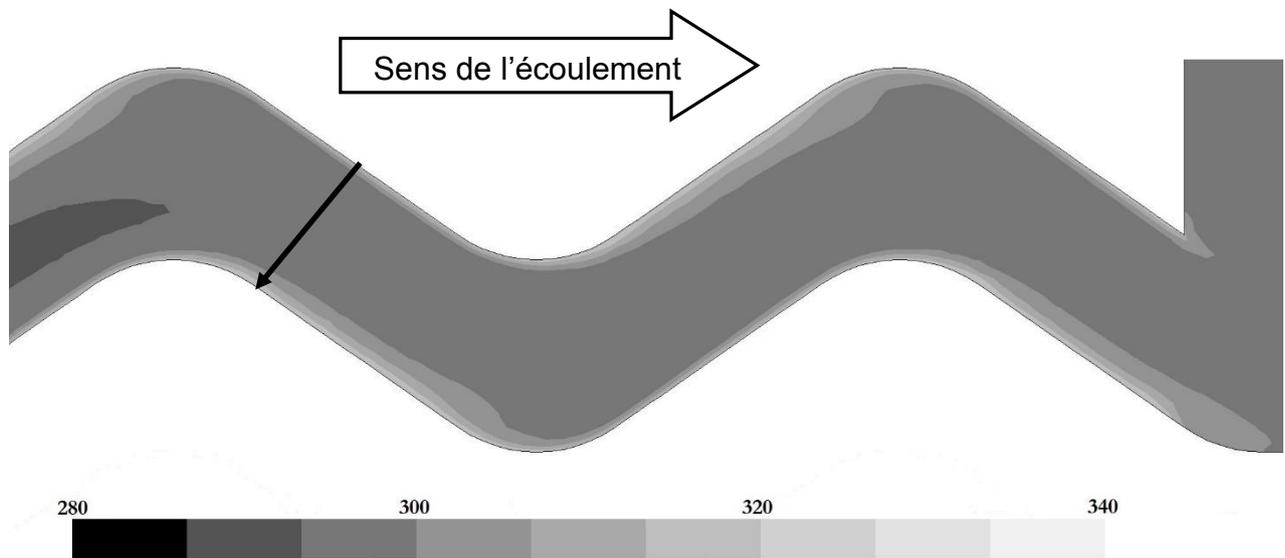


Figure 20. Champ de température (Kelvin) avant la sortie du 4^{ème} canal.

La Figure 21 présente sur un même graphique l'évolution de la vitesse et de la température suivant une ligne perpendiculaire au sens de l'écoulement représentée par une flèche sur la Figure 20. Cette évolution n'est pas symétrique par rapport à l'axe du canal. Du côté du canal correspondant à l'extrémité de la flèche, le gradient de température diminue à proximité de la paroi. Cela correspond à une zone de recirculation identifiée par des vitesses faibles à proximité de la paroi. Le couplage entre vitesse et température ici est clairement mis en évidence.

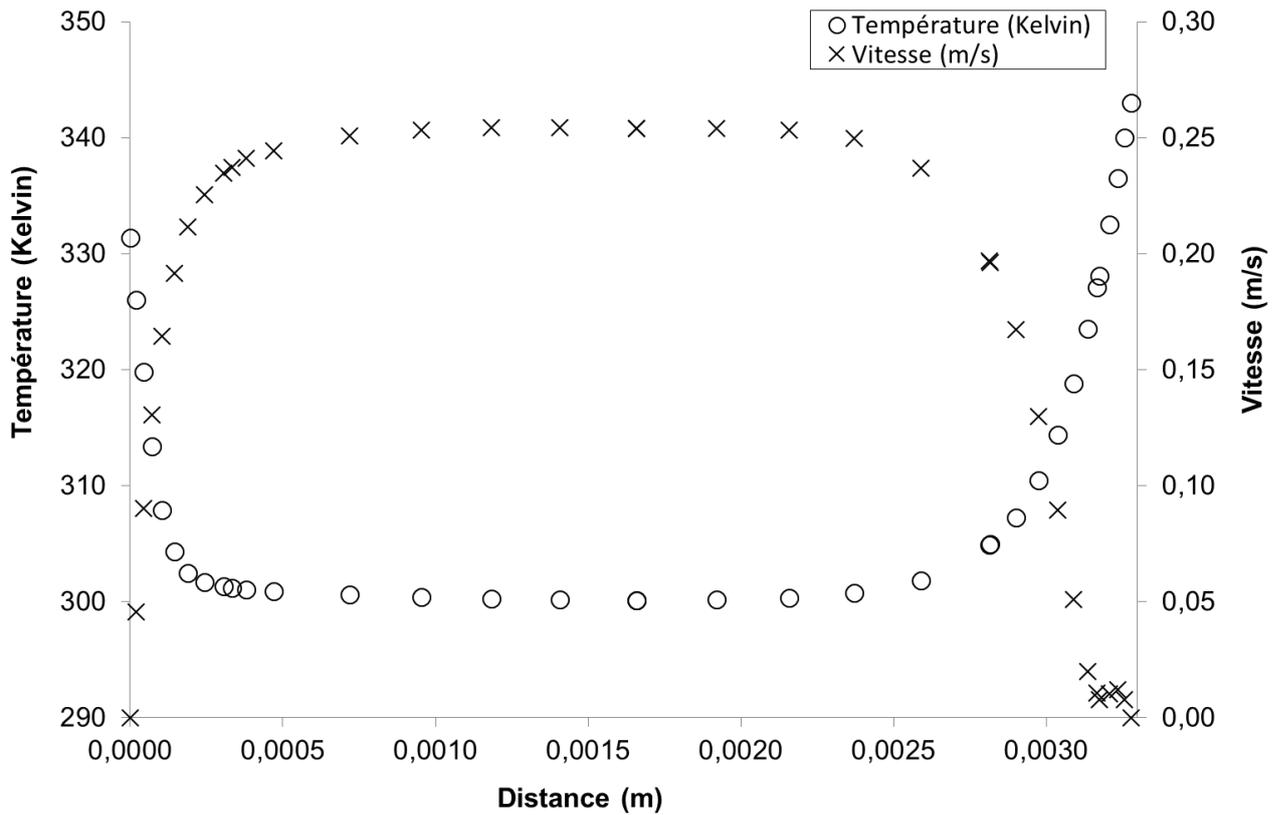


Figure 21. Profils de vitesse et de température transversaux à proximité de la sortie du 4^{ème} canal.

La précision du calcul des champs de température et de vitesse est cruciale pour évaluer correctement l'évolution de la BLG. En effet les cinétiques réactionnelles dépendent du couple formé par le temps et la température. La conversion d'une espèce à l'autre est d'autant plus importante que la température est élevée et le temps passé à cette température est long. Les zones de recirculation vont donc favoriser la dénaturation et par extension la formation des dépôts en paroi. La transformation de la BLG de l'état natif à l'état déplié puis agrégé est présentée Figure 22.

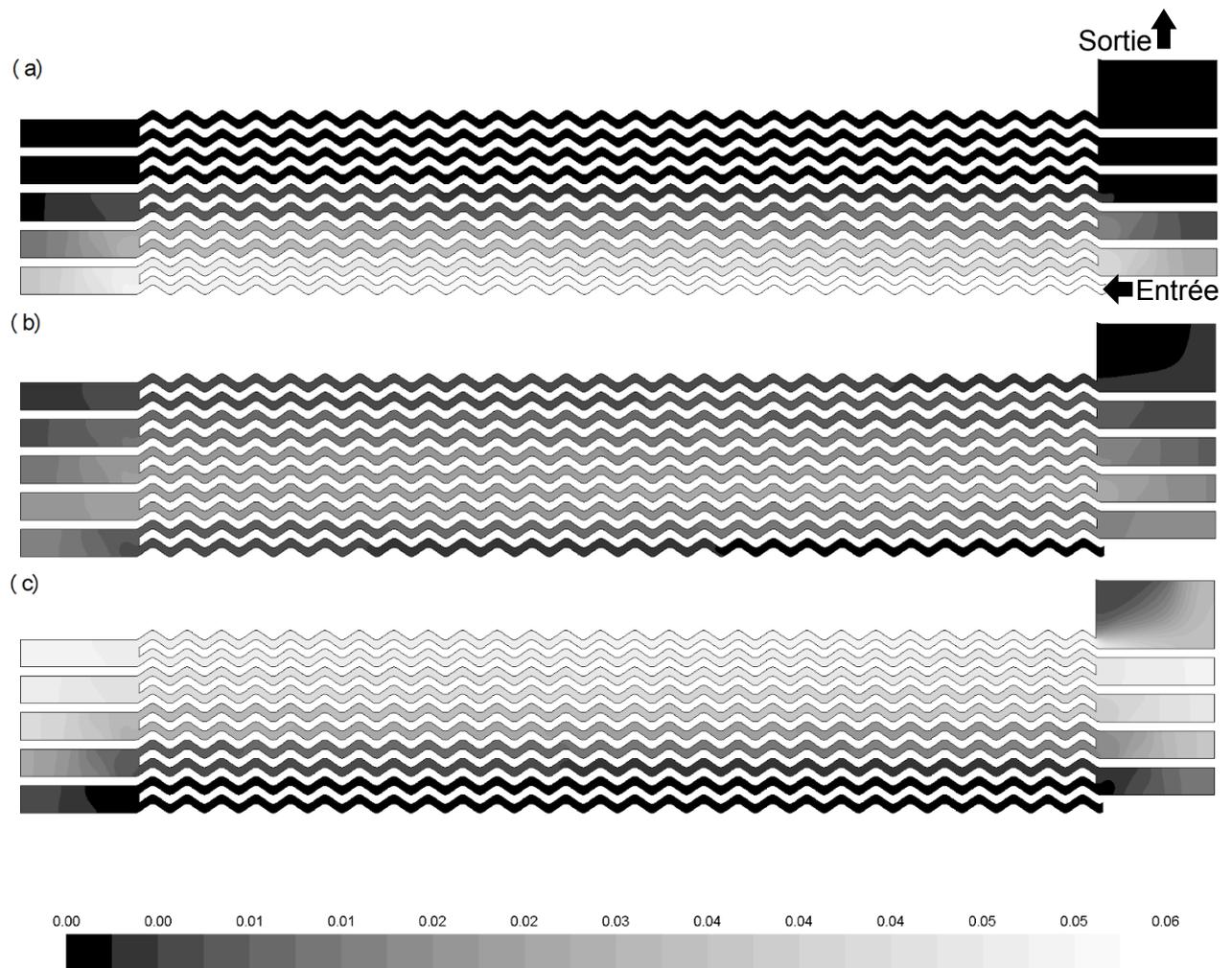


Figure 22. Concentration (kg/L) en BLG dans l'état natif (a), déplié (b) et agrégé (c).

On constate la disparition totale de la forme native en sortie d'échangeur au profit des formes dépliées et agrégées. Pour valider ces champs de concentration, une comparaison a été réalisée avec les mesures obtenues expérimentalement. La Figure 23 permet de comparer le niveau de dénaturation obtenu expérimentalement avec celui obtenu par simulation numérique. L'écart entre le modèle et les mesures expérimentales est compris dans un intervalle inférieur à $\pm 5\%$.

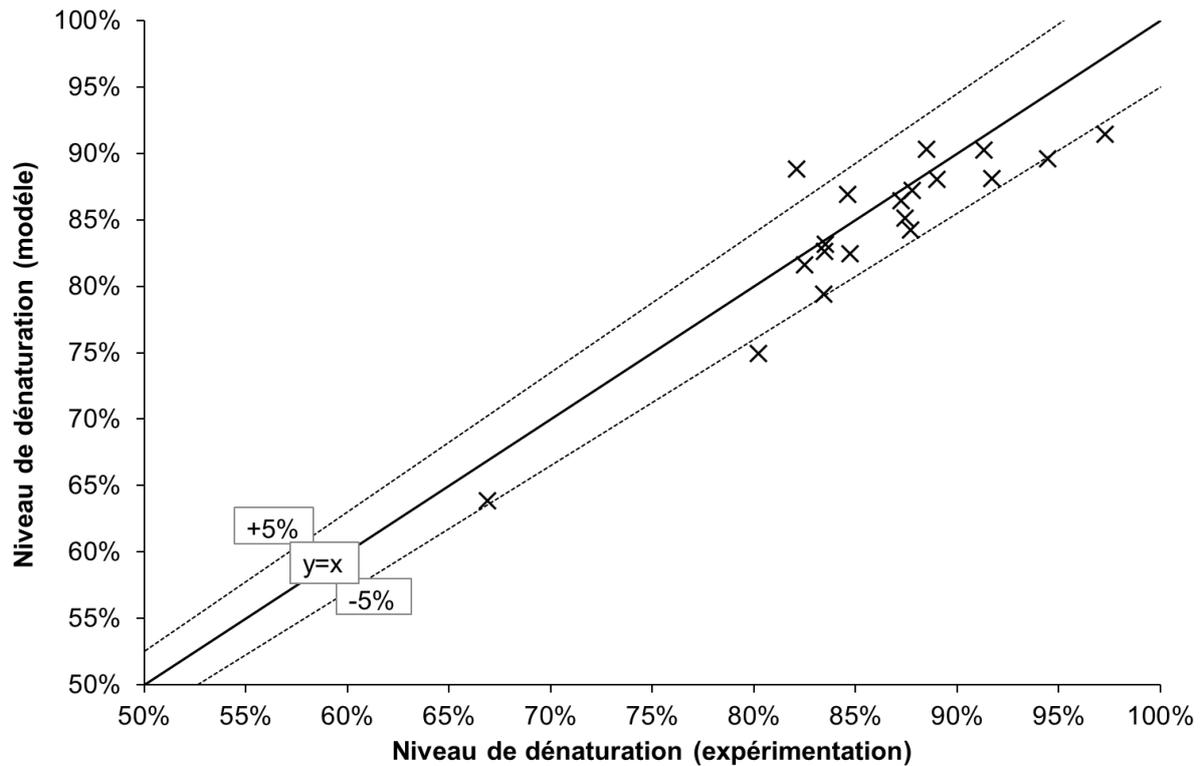


Figure 23. Comparaison du niveau de dénaturation de la BLG du produit A obtenu par simulation numérique et expérimentalement.

La comparaison entre le modèle et les données expérimentales pour le produit B (Figure 24) permet aussi de valider la simulation numérique de la dénaturation de la BLG. Dans cette comparaison, les résultats d'une simulation numérique monodimensionnelle sont aussi présentés en fonction des différents débits de circulation du produit. Le modèle 1D sous-estime le niveau de dénaturation. Cela montre qu'il est nécessaire de prendre en compte les variations locales de vitesse et de température pour pouvoir déterminer précisément les transformations de la BLG au sein d'un échangeur de chaleur.

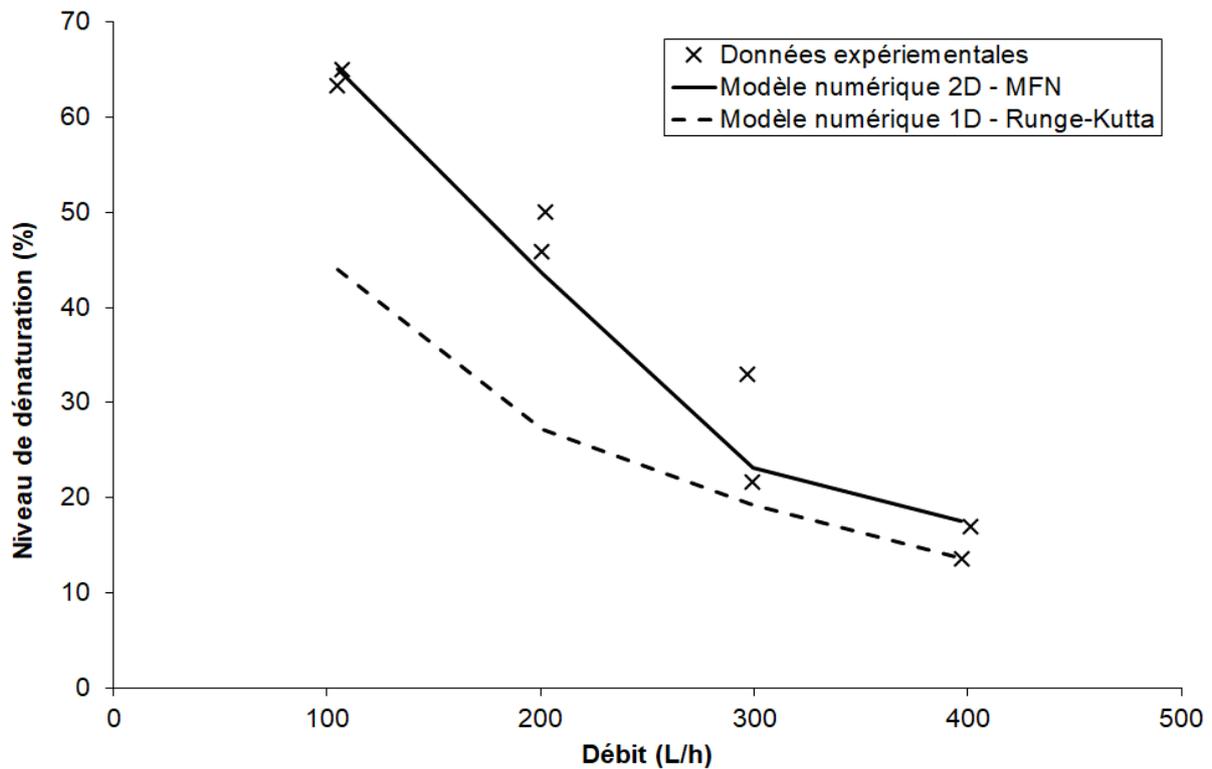
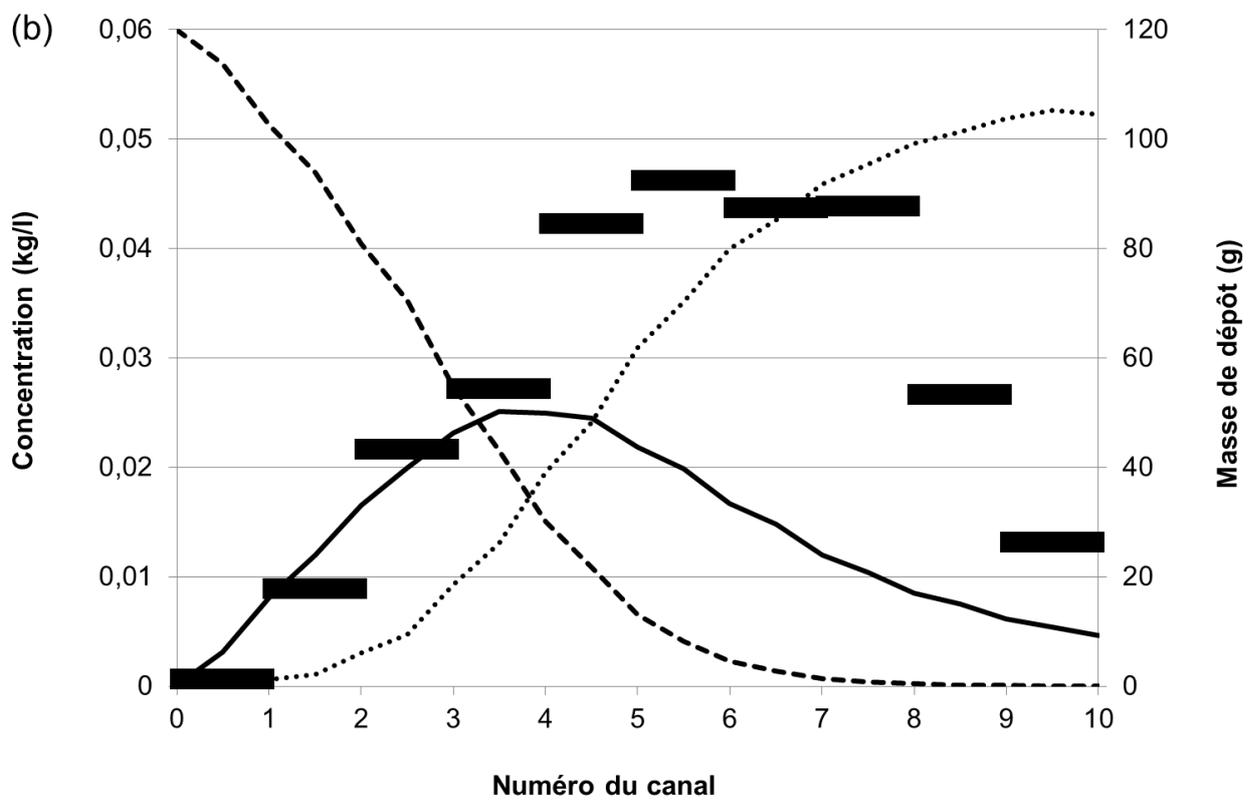
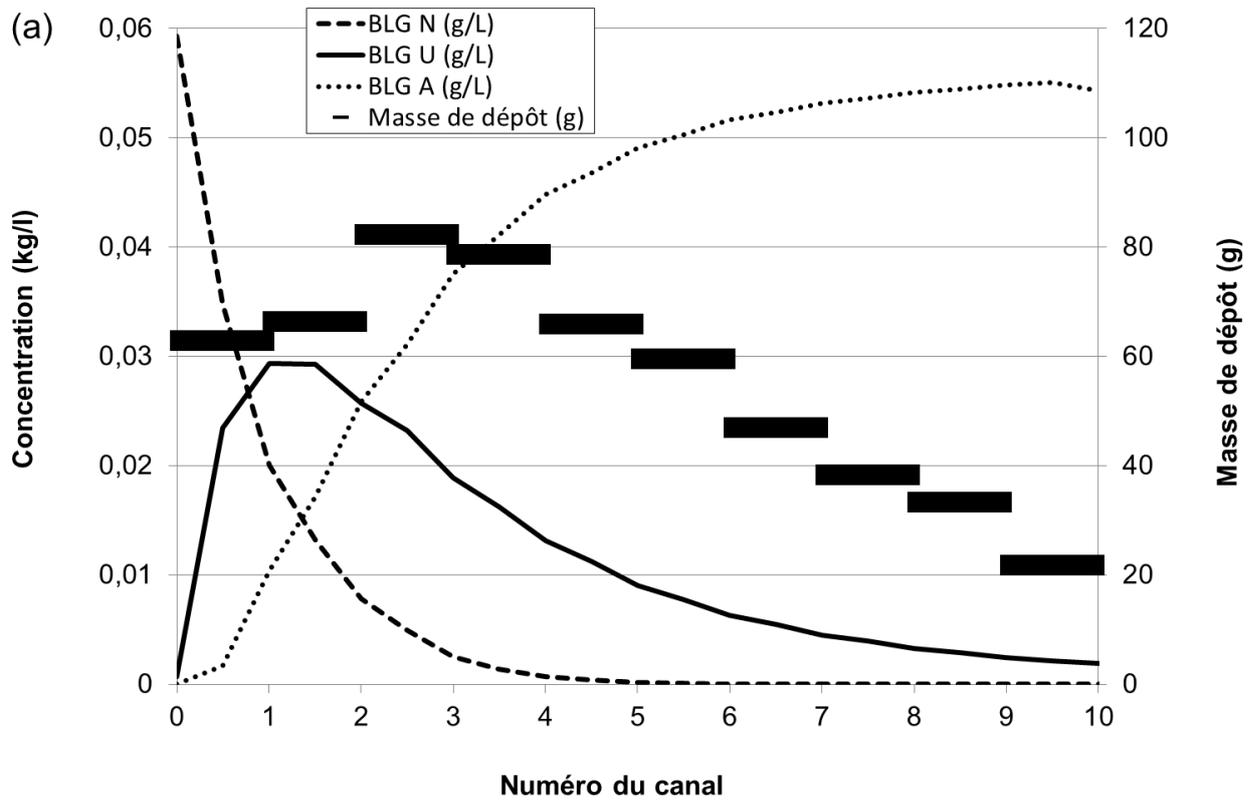


Figure 24. Comparaison du niveau de dénaturation de la BLG du produit B obtenu par simulation numérique en 2 dimensions, par calcul simplifié en 1 dimension et expérimentalement.

Lorsque le débit de produit augmente, le niveau de dénaturation diminue pour des différences de températures entre l'entrée et la sortie de l'ECP identiques. Cela s'explique simplement par le fait que le temps de séjour devient plus court lorsque le débit augmente et le taux de conversion de la BLG vers des formes U ou A diminue. Si on compare l'évolution de la concentration des différentes formes de BLG entre l'entrée et la sortie de l'ECP avec les masses de dépôt sec observées (Figure 25), on constate que les canaux où la masse de dépôt est la plus élevée correspondent à un pic de concentration en BLG dépliée.



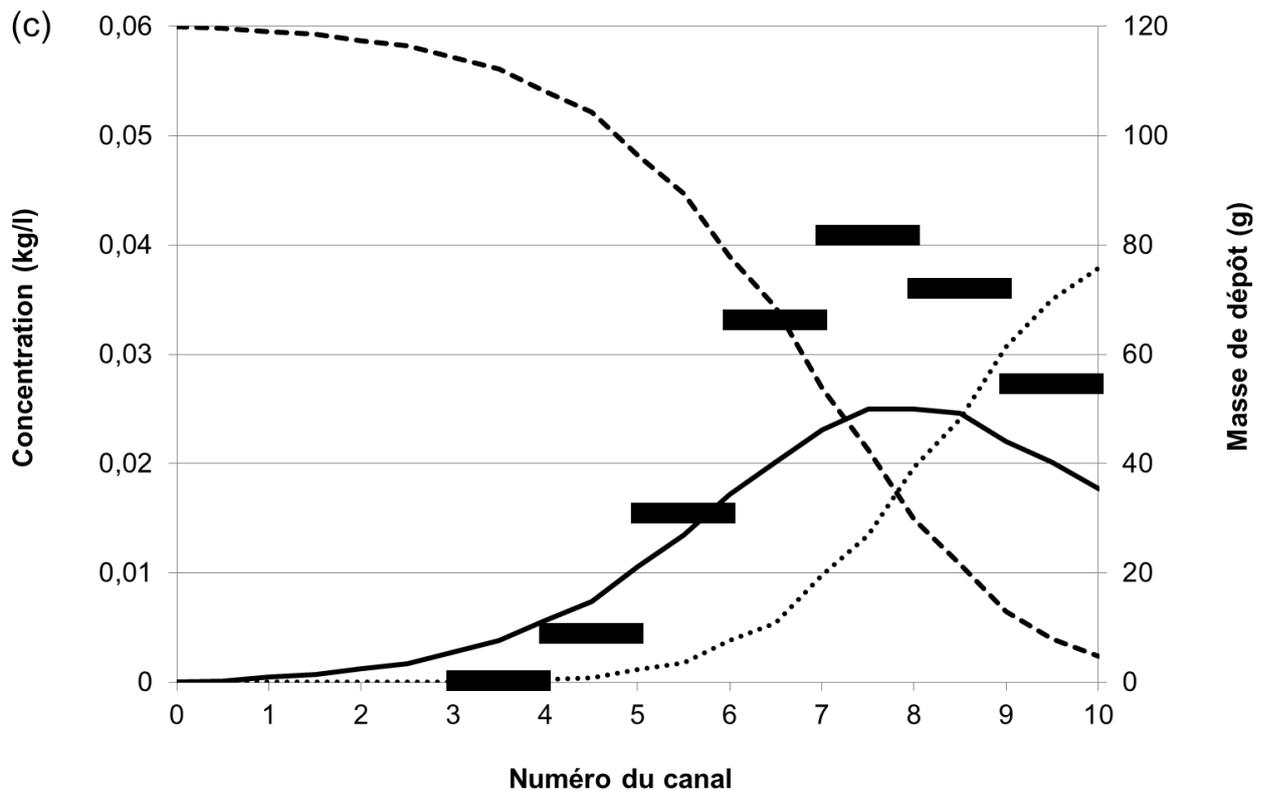
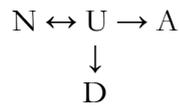


Figure 25. Evolution des différentes espèces natives (N), dépliés (U) et agrégés (A) de la BLG obtenue par simulation numérique et de la masse de dépôt sec mesurée dans chacun des canaux de l'ECP. Les figures (a), (b) et (c) correspondent respectivement aux expérimentations #2, #1 et #3.

On peut donc supposer que c'est la BLG dépliée, très réactive par exposition de groupement thiol, qui est le précurseur de la formation de dépôt à la paroi. Ceci se vérifie pour les expérimentations #1, #2 et #3 aux profils thermiques très différents.

2.4.5 Conclusion de l'étude numérique

Les outils de simulation numérique sont capables de déterminer localement la vitesse et la température d'un fluide ce qui rend possible la résolution de la cinétique chimique associée à la transformation de la BLG. Cela a été démontré pour des produits aux compositions différentes ayant subi différents traitements thermiques. Cette simulation permet aussi de confirmer que la BLG dépliée est à l'origine de la formation des dépôts. Un modèle réactionnel plus complet pourrait être construit sur le même principe en ajoutant une étape de transformation du type :



Où D correspond à la BLG qui forme le dépôt. La difficulté est de correctement identifier les paramètres cinétiques de cette nouvelle étape dans le schéma réactionnel présenté. Ce travail est une première brique pour la construction d'un modèle prenant en compte la masse de dépôt formée au cours du temps. Ces résultats ont été publiés dans *Journal of Food Engineering* (Bouvier et al., 2014).

La méthodologie proposée ici permettrait de valider un modèle de déposition à l'aide des masses de dépôt mesurées en fin d'expérience mais ne peut pas valider l'évolution de cette masse de dépôt au cours du temps sauf à réaliser autant d'expérience pour reconstituer cette évolution. Cela conduirait à un nombre d'expérimentation matériellement impossible à réaliser. Une solution serait de pouvoir suivre la formation du dépôt au cours du temps à l'aide d'une sonde d'encrassement. La validation du modèle d'encrassement serait facilitée et l'information obtenue plus pertinente pour mieux comprendre les mécanismes de formation des dépôts. Le chapitre 3 présentera le développement d'un tel dispositif.

Les résultats numériques montrent aussi que l'organisation de l'écoulement joue un rôle important dans la dénaturation de la BLG principal constituant du dépôt. Le chapitre 4 montrera l'effet d'une modification de la structure d'un écoulement à l'intérieur d'un tube sur la formation d'un dépôt d'origine protéique.

2.5 MODELE GENERIQUE DE PREDICTION DE LA MASSE DE DEPOT DANS UN ECHANGEUR DE CHALEUR A PLAQUES

2.5.1 Introduction

Plusieurs facteurs interviennent dans le mécanisme de formation des dépôts et leurs effets ont été mis en évidence. A partir des nombreuses expérimentations réalisées au laboratoire, nous avons à notre disposition une base de données d'essais réalisés avec des produits différents pour plusieurs configurations d'échangeur et plusieurs conditions expérimentales. D'où l'idée d'élaborer un modèle de prédiction de la masse totale de dépôt protéique dans un échangeur de chaleur à plaques par une méthode d'analyse dimensionnelle basée sur les essais d'encrassement réalisés avec plusieurs solutions de lactosérum différentes. La démarche est la même que celle présentée au paragraphe 2.2 mais au lieu de chercher à montrer l'effet d'un ou plusieurs paramètres choisis au début, le modèle générique prendra en compte l'ensemble des paramètres disponibles intervenant dans le mécanisme de dépôt.

Les modèles basés sur la simulation numérique des écoulements et des mécanismes de formation des dépôts, comme celui proposé par Georgiadis et Macchietto (2000), sont complexes à mettre en œuvre parce qu'ils nécessitent la résolution d'un jeu d'équations différentielles et l'accès à des ressources permettant le calcul intensif. L'inconvénient majeur de ce type de modèles est qu'ils ne permettent de résoudre qu'une seule condition expérimentale à la fois. Jun et Puri (2005) ont mis en œuvre un logiciel de mécanique des fluides numérique (Fluent, ANSYS ©) pour simuler la formation d'un encrassement laitier dans un échangeur à plaques. Outre les besoins en puissance de calcul, il faut acquérir une licence et avoir de multiples compétences pour mettre en œuvre ce type de solution.

Le modèle proposé ici a vocation de mieux comprendre les cinétiques de formation de l'encrassement ainsi que de prédire et contrôler les masses de dépôt. Nous avons choisi une méthode d'analyse dimensionnelle pour prédire la masse de dépôt pour différentes poudres de lactosérum, débits de circulation, temps de traitement, concentrations en calcium et températures de traitement. Cette approche permet d'obtenir un modèle facile à implémenter et permettant de mieux comprendre l'effet des paramètres d'intérêt sur le paramètre cible.

2.5.2 Matériels et méthodes

Les 38 solutions de protéine testées notées FS1 à FS38 ont été obtenues par réhydratation dans de l'eau osmosée en cuve agitée de 3 poudres de lactosérum différentes. La composition du

lactosérum en poudre est présentée dans le Tableau 9. La quantité de calcium de chaque solution a été ajustée soit par ajout de chlorure de calcium (96 %, Acros Organics, Thermo Fisher Scientific, Waltham, MA, USA), soit par ajout d'eau brute connaissant sa teneur en calcium. Les teneurs en calcium sont mesurés à l'aide d'un spectrophotomètre d'absorption atomique (Spectro AA 55B, Varian, Palo Alto, CA, USA).

Tableau 9. Composition du lactosérum en poudre (P1 : PROMILK 852 FB1, IDI SAS-France; P2 : PROTARMOR 750, Armor Proteines-France; P3 : PROLACTA 95, Lactalis-France).

Poudre	P1	P2	P3
Protéine totale (% matière sèche)	86,0	80,8	≥ 95,0
Protéine totale (%)	80,1	76,0	≥ 90,0
BLG (% protéine)	66,0	63,0	60,6
α-la (% protéine)	13,3	11,0	0,0
Matière grasse (%)	1	3,7	≤ 0,4
Lactose (%)	11	10	≤ 3,0
Minéraux (%)	2,9	4	≤ 3,0
Humidité (%)	5	5,5	≤ 6,0

Les 38 essais d'encrassement ont été réalisés sur le même type d'installation constituée d'une cuve d'agitation, d'une zone de préchauffage et d'une zone de chauffe constituée d'un échangeur de chaleur à plaques type V7 (Alfa Laval, France) utilisant de l'eau surchauffée comme fluide secondaire. La description détaillée des essais est regroupée dans les Tableau 10 et Tableau 11.

Tableau 10. Masse de dépôt obtenue, composition en calcium et protéine des solutions encrassantes et conditions opératoires des essais expérimentaux.

Number of fouling solutions	Powder used	Fouling solution concentration (g powder/L)	Calcium concentration in the fouling (mg/Kg)	Calcium/ β -lg molar ratio	Fouling solution flow rate L/h	processing time		Total fouling mass kg
						min		
FR1	P1	10	100.0	8.67	300.0	120		0.1047
FR2		10	100.0	8.67	300.0	120		0.1530
FR3		10	100.0	8.67	300.0	120		0.1130
FR4		10	100.0	8.67	300.0	120		0.1733
FR5		10	100.0	8.67	300.0	120		0.3773
FR6		10	120.0	10.40	300.0	120		0.1541
FR7		10	120.0	10.40	300.0	120		0.1614
FR8		10	120.0	10.40	300.0	120		0.1550
FR9		2.5	100.0	34.66	300.0	120		0.1352
FR10		5	100.0	17.33	300.0	120		0.1556
FR11		20	100.0	4.33	300.0	120		0.0484
FR12		25	100.0	3.47	300.0	120		0.0290
FR13	P2	10	72.9	6.97	202.0	330		0.2142
FR14		10	79.8	7.64	202.3	330		0.3600
FR15		10	82.2	7.86	203.5	330		0.5090
FR16		10	85.6	8.19	206.4	330		0.5942
FR17		10	70.0	6.70	337.2	330		0.3673
FR18		10	76.3	7.30	324.2	330		0.6861
FR19		10	78.0	7.46	322.4	330		0.6976
FR20		10	86.5	8.28	324.9	330		0.9218
FR21		10	74.6	7.14	499.4	330		0.3242
FR22		10	77.4	7.41	493.8	330		0.3682
FR23		10	77.8	7.44	492.8	330		0.4261
FR24		10	87.4	8.36	495.6	330		0.7141
FR25	P3	10	33.0	2.77	300.0	120		0
FR26		10	95.0	7.99	300.0	120		0.0964
FR27		5	77.0	12.94	300.0	120		0.1143
FR28		5	98.0	16.48	300.0	120		0.2759
FR29		5	104.9	17.64	300.0	120		0.2305
FR30		5	94.4	15.87	300.0	120		0.2118
FR31		5	99.7	16.76	300.0	120		0.2214
FR32		10	98.0	8.49	300.0	120		0.0951
FR33		10	96.0	8.32	300.0	90		0.1013
FR34		10	96.0	8.32	300.0	90		0.1046
FR35		10	97.0	8.41	300.0	90		0.0572
FR36		10	97.0	8.41	300.0	90		0.0735
FR37		10	101.6	8.80	300.0	90		0.0825
FR38		10	101.6	8.80	300.0	90		0.0738

Tableau 11. Nombre de passe et profils de température des essais expérimentaux.

Number of fouling solutions	Number of passes	Fouling solution temperature at different positions of the heat exchanger (°C)*										
		T0	T1	T2	T3	T4	T5	T6	T7	T8	T9	T10
FR1	5	65	67	71	76	81	84	-	-	-	-	-
FR2	5	65	68	74	79	82	84	-	-	-	-	-
FR3	5	65	66	68	72	77	83	-	-	-	-	-
FR4	10	65	66	69	71	73	75	77	79	81	83	85
FR5	10	65	68	73	77	79	81	82	83	84	85	85
FR6	5	65	67	71	76	81	84	-	-	-	-	-
FR7	5	65	68	74	79	82	84	-	-	-	-	-
FR8	5	65	66	68	72	77	83	-	-	-	-	-
FR9	5	65	67	71	76	81	84	-	-	-	-	-
FR10	5	65	67	71	76	81	84	-	-	-	-	-
FR11	5	65	67	71	76	81	84	-	-	-	-	-
FR12	5	65	67	71	76	81	84	-	-	-	-	-
FR13	6	62.3	67.7	74.1	79.3	85.6	91.2	96.8	-	-	-	-
FR14	6	60.0	65.3	72.4	77.7	83.9	89.7	96.5	-	-	-	-
FR15	6	61.5	67.0	73.2	78.8	85.3	90.7	97.1	-	-	-	-
FR16	6	60.4	66.2	72.9	78.0	84.6	90.3	95.8	-	-	-	-
FR17	6	63.8	68.1	74.4	79.4	84.5	90.1	95.4	-	-	-	-
FR18	6	61.3	65.0	72.3	78.2	83.3	89.4	95.7	-	-	-	-
FR19	6	62.6	65.7	72.6	78.4	83.5	89.5	95.0	-	-	-	-
FR20	6	62.7	66.2	72.2	77.6	83.1	88.6	94.6	-	-	-	-
FR21	6	60.8	66.0	72.6	77.7	83.9	89.5	95.4	-	-	-	-
FR22	6	61.3	66.5	73.2	78.3	84.6	90.2	96.2	-	-	-	-
FR23	6	63.2	68.4	74.1	79.0	84.0	89.9	95.4	-	-	-	-
FR24	6	61.1	66.5	72.9	78.1	84.4	89.9	95.9	-	-	-	-
FR25	10	60.0	63.2	65.7	68.3	70.9	73.4	76.0	78.7	81.3	84.1	85.2
FR26	10	60.0	63.2	65.7	68.3	70.9	73.4	76.0	78.7	81.3	84.1	85.2
FR27	10	60.0	63.2	65.7	68.3	70.9	73.4	76.0	78.7	81.3	84.1	85.2
FR28	10	60.0	63.2	65.7	68.3	70.9	73.4	76.0	78.7	81.3	84.1	85.2
FR29	10	60.0	63.2	65.7	68.3	70.9	73.4	76.0	78.7	81.3	84.1	85.2
FR30	10	60.0	63.2	65.7	68.3	70.9	73.4	76.0	78.7	81.3	84.1	85.2
FR31	10	60.0	63.2	65.7	68.3	70.9	73.4	76.0	78.7	81.3	84.1	85.2
FR32	5	65.0	68.5	73.2	77.9	83.0	85.0	-	-	-	-	-
FR33	5	65.0	68.5	73.2	77.9	83.0	85.0	-	-	-	-	-
FR34	5	65.0	68.5	73.2	77.9	83.0	85.0	-	-	-	-	-
FR35	5	65.0	68.5	73.2	77.9	83.0	85.0	-	-	-	-	-
FR36	5	65.0	68.5	73.2	77.9	83.0	85.0	-	-	-	-	-
FR37	5	65.0	68.5	73.2	77.9	83.0	85.0	-	-	-	-	-
FR38	5	65.0	68.5	73.2	77.9	83.0	85.0	-	-	-	-	-

* T₀ : Température d'entrée produit, T_n : Température du produit dans la passe numéro n.

Le préchauffage est réalisé par un échangeur de chaleur à passage de courant ou un échangeur de chaleur à plaques. La température de sortie du produit est maintenue constante en agissant sur la température du fluide secondaire. La masse de dépôt totale obtenue à la fin de l'essai dans la zone de chauffage de l'installation est présentée dans la dernière colonne du Tableau 10.

. Le temps indiqué dans le tableau correspond à la durée de l'essai d'encrassement. La masse de dépôt est mesurée après séchage des plaques durant une nuit dans une étuve ventilée à une température de 50 °C. Les profils de température dans l'échangeur sont obtenus par calcul avec le logiciel SPHERE v4 (INRA, Danone ©). Les températures d'entrée et de sortie du produit sont mesurées par des sondes de platines étalonnées avec une précision de $\pm 0,1$ °C.

2.5.3 Résultats

La variable cible pour le modèle à établir est la masse de dépôt totale après essai (M_f). Les variables d'intérêt qui interviennent dans le phénomène encrassant peuvent être classées en 3 catégories et sont décrits dans le Tableau 12 :

- Les paramètres produits qui décrivent la composition chimique du produit et les propriétés physiques de la solution encrassante. La BLG intervient de manière prépondérante dans la formation des dépôts de type A. La proportion de BLG dans la poudre utilisée (%BLG) et la concentration initiale de BLG dans la solution ([BLG]) sont choisies comme paramètres clés. De la même manière la concentration en calcium ([Ca]) apparait. La concentration des solutions encrassantes est faible, en conséquence les valeurs de la masse volumique et la viscosité sont considérées être identiques à celles de l'eau. Les températures seuils pour le dépliement (θ_{unf}) et l'agrégation (θ_{agg}) sont des paramètres clés qui décrivent le comportement de la BLG en solution et sont aptitudes à former des dépôts. Pour plus de simplicité d'utilisation du modèle, ces températures ont respectivement été fixées à 60 et 80 °C.
- Les paramètres procédés correspondent aux temps de traitement du produit (durée de l'expérimentation), conditions hydrodynamiques et thermiques. Les paramètres qui interviennent sont la vitesse moyenne du fluide (v), la quantité totale de protéine (M_{pr}) qui subit le traitement thermique en passant dans l'ECP et les profils de température subis par la solution encrassante. La description du profil de température est réalisée en utilisant un minimum de paramètres. Un point intermédiaire du profil est décrit par ces deux coordonnées : n/j et $\theta_{n1>80}$. n/j décrit la proportion des canaux de l'échangeur où la température dépasse 80 °C. j correspond au nombre total de passes ($5 \leq j \leq 10$) et n au

nombre de canaux pour lesquels la température dépasse 80 °C. $\theta_{n1>80}$ est la température atteinte dans le premier canal dépassant 80 °C. Ces paramètres autour de la température d'agrégation ont été choisis car cette température correspond à un point de transition entre deux régimes d'encrassement. La masse de dépôt est croissante dans les premiers canaux puis atteint un plateau.

- Les paramètres géométriques qui décrivent le domaine d'écoulement qui sont l'espace entre deux plaques d'échangeur formant un canal (e) et la surface totale d'échange ($S_{\text{exch}}=2.j.S$) où S est la surface utile d'une plaque.

Tableau 12. Liste des paramètres d'intérêt dans le traitement thermique d'une solution de lactosérum dans un échangeur de chaleur à plaques.

Catégorie de paramètre	Symbole	Nom	Unité
Paramètre cible	M_f	Masse totale de dépôt	Kg
Paramètres produit	%BLG	Pourcentage massique de BLG dans la quantité totale de protéines	-
	θ_{unf}	Température de dépliement de la BLG	°C
	θ_{agg}	Température au-dessus de laquelle la réaction de dénaturation de la BLG est limitée par l'agrégation	°C
	ρ	Masse volumique de la solution encrassante	kg m ⁻³
	μ	Viscosité dynamique de la solution encrassante	kg m ⁻¹ s ⁻¹
Paramètres	M_{pr}	Masse totale de protéine traitée thermiquement dans l'ECP	Kg
procédé	[Ca]	Concentration en calcium dans la solution encrassante	mol m ⁻³
	[BLG]	Concentration initiale en BLG dans la solution encrassante	mol m ⁻³
	v	Vitesse d'écoulement de la solution encrassante	m s ⁻¹
	θ_{ip}	Température d'entrée de la solution encrassante	°C
	θ_{op}	Température de sortie de la solution encrassante	°C
	n/j	Rapport indiquant la position du canal n à partir duquel la température dépasse 80 °C. j est le nombre total de passes.	-
	$\theta_{n1>80}$	Température dans la première passe où la température dépasse 80°C	°C
Paramètres décrivant la géométrie de l'échangeur	e	Espace moyen entre deux plaques de l'ECP	M
	S_{exch}	Surface totale d'échange de chaleur	m ²
	S_0	Surface utile d'une plaque d'échangeur	m ²

La deuxième étape consiste à regrouper l'ensemble des paramètres en un jeu de nombres sans dimensions indépendant des unités fondamentales. Cela permet de réduire le nombre de

paramètres à prendre en considération dans une relation de procédé. On obtient ainsi un jeu de 12 nombres sans dimensions :

$$\pi_1 = \frac{M_f}{\rho e^3} = f(\pi_2 = \%BLG; \pi_3 = Re; \pi_4 = \frac{M_{pr}}{\rho e^3}; \pi_5 = \frac{[Ca]}{[BLG]}; \pi_6 = \frac{\theta_{ip}}{\theta_{unf}}; \pi_7 = \frac{\theta_{op}}{\theta_{agg}}; \pi_8 = \frac{n}{j}; \pi_9 = \frac{\theta_{n1>80}}{\theta_{agg}}; \pi_{10} = \frac{1}{2} \cdot \frac{S_{exch}}{e^2} = \frac{S_{exch}}{2 \cdot S_0} = j; \pi_{11} = \frac{S_0}{e^2}, \quad \pi_{12} = \frac{\theta_{unf}}{\theta_{agg}})$$

$$\text{Avec } Re = 2 \cdot \frac{\rho v e}{\mu}$$

Le diamètre hydraulique correspond à deux fois l'espace entre plaques. Les paramètres constants ne sont pas pris en compte dans la construction de la relation de procédé (π_{11} et π_{12}). Le domaine de validité de la relation proposée est le suivant :

$$\begin{aligned} 1,89 \times 10^4 &\leq \frac{M_{pr}}{\rho e^3} \leq 3,29 \times 10^5, & 5 \leq j \leq 10, \\ 2000 &\leq Re \leq 4942, & 60,6\% \leq \%BLG \leq 66,0\% \\ 1,0000 &\leq \frac{\theta_{ip}}{\theta_{unf}} \leq 1,0833, & 0,2 \leq \frac{n}{j} \leq 0,6, \\ 1,0125 &\leq \frac{\theta_{n1>80}}{\theta_{agg}} \leq 1,0700, & 1,03750 \leq \frac{\theta_{op}}{\theta_{agg}} \leq 1,21375, \\ 2,77 &\leq \frac{[Ca]}{[BLG]} \leq 34,66, & 3/4 = \frac{\theta_{unf}}{\theta_{agg}}. \end{aligned}$$

Le modèle de procédé proposé est le suivant :

$$\frac{M_d}{\rho e^3} = j \cdot \left(\frac{M_{pr}}{\rho e^3} \right)^{1.1} \left[k \left(\frac{\theta_{ip}}{60} \right)^{0.40} \left(\frac{n}{j} \cdot \frac{\theta_{n1>80}}{80} \right)^{0.92} \left(\frac{\theta_{op}}{80} - 1 \right)^{1.48} \left(\frac{[Ca]}{[BLG]} \right)^{1.1} + b \right]$$

Equation 38

Dans l'Equation 38, k et b sont des fonctions de Re et %BLG permettant la prise en compte de l'influence de l'hydrodynamique et de la composition en protéines laitières sur la masse de dépôt.

$$k = 0,93669 \left[(9554 \cdot \%BLG^2 - 12844 \cdot \%BLG + 4552) \cdot \left(0,6221 \left(\frac{Re}{3007} \right)^2 - 2,5074 \left(\frac{Re}{3007} \right) + 3,0121 \right) \right] + 0,81568 \quad \text{Equation 39}$$

$$b = -0,01513 \left[(84259 \cdot \%BLG^2 - 106567 \cdot \%BLG + 33628) \cdot (-8,3904 \times 10^{-6} Re^2 + 0,085537 Re - 257,16) \right] + 0,98587 \quad \text{Equation 40}$$

Les coefficients de ces deux relations quadratiques ont été déterminés de manière itérative en minimisant la somme des erreurs entre les valeurs prédites et les masses de dépôt mesurées expérimentalement. On peut faire apparaître une corrélation linéaire entre le paramètre cible

$\frac{M_d/\rho e^3}{j \cdot (M_{pr}/\rho e^3)^{1,1}}$ et les paramètres suivants : $\left(\frac{\theta_{ip}}{\theta_{unf}}\right)^{0,40}$; $\left(\frac{n}{j} \cdot \frac{\theta_{n1>80}}{\theta_{agg}}\right)^{0,2}$; $\left(\frac{\theta_{op}}{\theta_{agg}} - 1\right)^{1,8}$; $\left(\frac{[Ca]}{[BLG]}\right)^{1,1}$. Dans cette relation linéaire la pente et l'ordonnée à l'origine dépendent du nombre de Reynolds et de la quantité de BLG.

La Figure 26 montre que la relation proposée prédit correctement la masse de dépôt avec une erreur de $\pm 25\%$. Ce résultat est satisfaisant compte tenu des incertitudes liées aux expérimentations à l'échelle pilote.

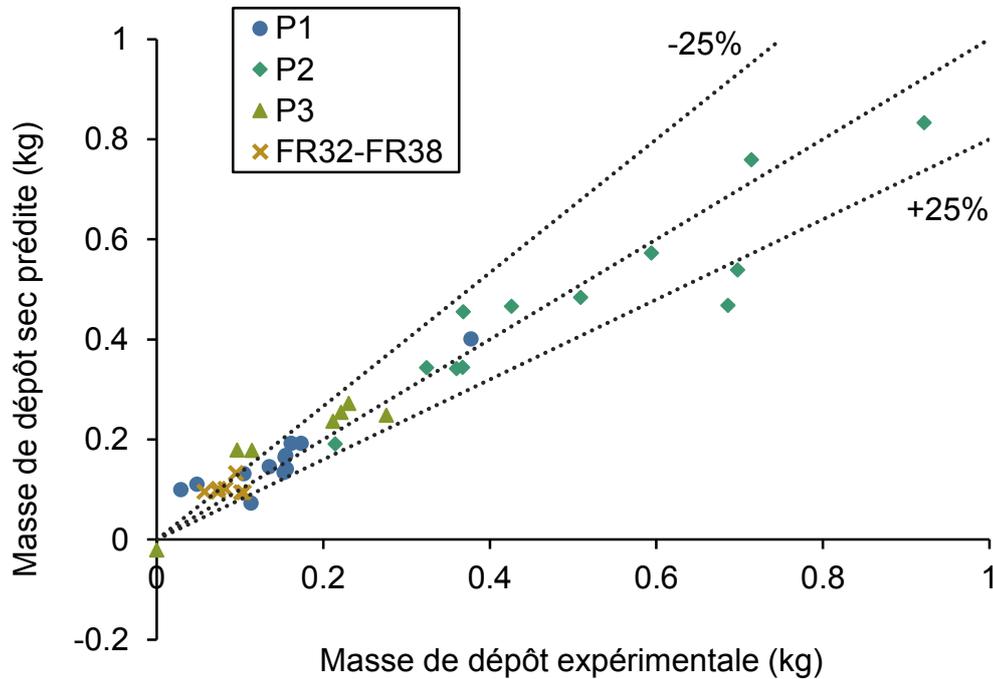


Figure 26. Masses de dépôt prédites et expérimentales pour les poudres P1 à P3 et les essais FR32 à FR38.

Les essais complémentaires notés FR32 à FR38 permettent de vérifier la validité de la relation proposée pour de faibles masses de dépôt. Malgré la forte dispersion des valeurs, la prédiction du modèle est correcte.

Le modèle proposé montre que :

- La masse totale de dépôt est proportionnelle à la masse totale de protéine traitée thermiquement dans l'échangeur et du nombre de passes qui correspond à la surface totale de transfert de chaleur.
- Le rapport $\frac{M_d/\rho e^3}{j \cdot (M_{pr}/\rho e^3)^{1,1}}$ est proportionnel au rapport $\frac{[Ca]}{[βlg]}$ dans les limites de validité précédemment décrites. Ce qui est conforme avec les conclusions de Sherwin et Foegeding

(1997) établissant une relation entre le phénomène d'agrégation et le rapport entre les concentrations en CaCl_2 et en protéine plutôt qu'avec les concentrations prises séparément. Cela a aussi été confirmé plus récemment dans Khaldi et al. (2018) qui ont montré que le rapport molaire calcium sur protéine agit sur la cinétique de dénaturation de la BLG et la formation des dépôts.

- La température de sortie et le profil de température ont un effet bien plus important que la température d'entrée sur la formation du dépôt.

2.5.4 Conclusion

Un modèle générique de prédiction de masse de dépôt formée dans un ECP est proposé. Ce modèle a été généré à partir d'essais d'encrassement réalisés dans plusieurs conditions expérimentales utilisant des solutions encrassantes de compositions différentes. La masse de dépôt obtenue par le modèle prédit correctement la masse de dépôt mesurée expérimentalement. La relation proposée permet de confirmer les leviers permettant de limiter la formation du dépôt.

2.6 CONCLUSION

L'état des connaissances réalisé dans le premier chapitre a mis en évidence l'impact négatif de l'encrassement laitier sur les performances des échangeurs de chaleur conventionnels. On a pu constater dans un premier temps, que les enjeux socio-économiques visant à maîtriser ces phénomènes d'encrassement étaient considérables

Au niveau des mécanismes, il apparaît que la mise en œuvre d'un traitement thermique de pasteurisation favorise la dénaturation des protéines, leurs interactions avec la paroi et aboutit à des dépôts protéiques. Les cinétiques de dépôt protéique sont toutefois fortement impactées par les proportions en calcium des solutions de lactosérum.

L'analyse des études portant sur l'encrassement des échangeurs de chaleur par les produits laitiers montrent que ce phénomène est complexe à appréhender et à modéliser car il est gouverné non seulement par des facteurs liés à la composition chimique des assemblages protéiques à pasteuriser mais aussi par des réactions chimiques qui dépendent elles-mêmes des paramètres procédés (conditions opératoires de chauffage), de la géométrie et des propriétés de paroi des échangeurs.

Cet état de l'art a permis néanmoins, de mettre en évidence certaines lacunes de la littérature

i) Tout d'abord, bien que différents travaux mentionnent abondamment l'influence du calcium sur les phénomènes d'encrassement protéique, aucun modèle prédictif d'encrassement protéique n'est proposé pour prendre en considération la teneur en calcium des solutions protéiques.

ii) De même, les concentrations des espèces protéiques de la BLG en solutions (native, dépliée, agrégée) en vis-à-vis de la paroi chaude de l'équipement n'étaient pas totalement connues. Ceci nous empêchait d'établir quelles sont les liens entre la distribution de la masse de dépôt dans les canaux de l'échangeur et la concentration des espèces et d'identifier la ou les espèces protéiques de la BLG en solutions précurseurs du dépôt.

iii) Il n'y a pas d'étude de Mécanique des Fluides Numérique simulant la dénaturation chaude de la BLG dans un échangeur de chaleur. Toutes les études, jusqu'à présent, se limitent à présenter des cartographies de vitesses et de températures dans les canaux de l'échangeur mais n'intègrent pas la modélisation des mécanismes de transformation de la BLG conduisant à la formation des dépôts.

iv) Enfin, on ne disposait pas dans l'unité de corrélations empiriques prédictives de la masse de dépôt valables pour l'ensemble de nos essais d'encrassement avec des solutions de lactosérum et calcium intégrant à la fois les influences produit/procédé.

Ainsi, j'ai pris part à un certain nombre d'actions de recherche [1-7] au sein de l'équipe PIHM de l'UMET pour aider [2-7] ou conduire des actions de modélisation [1] apportant des réponses aux quatre problématiques listés ci-dessous :

i) J'ai participé et réfléchi à des voies de modélisation qui permettaient d'incorporer la teneur en calcium dans les approches de modélisation de dépôt [2]. Pour ce faire, nous avons réalisé une modélisation par analyse dimensionnelle en prenant comme variable cible la masse de dépôt au bout d'un temps donné. Puis nous avons proposé une relation de procédé de type Kern et Seaton comprenant un terme d'adhésion et de décrochement. L'ajustement des paramètres de la relation de procédé a été obtenu en réexploitant une base de données existante d'essais d'encrassement en ECP conduits avec des solutions de protéines sériques (WPC) à 1% (p/p) à teneur variable en calcium. Ce modèle a été l'un des premiers permettant de quantifier l'effet de la teneur en calcium des solutions protéiques sur la distribution totale de la masse de dépôt dans un ECP.

ii) De même, suite à l'identification des constantes cinétiques des solutions protéiques en laboratoire, j'ai participé et réfléchi au développement d'un modèle simplifié de génie de la réaction simulant l'apparition et la disparition des espèces protéiques au sein de l'ECP selon le profil en température subi. Ce bilan de populations des espèces protéiques dans l'ECP a été analysé afin de mettre en relation la concentration des espèces protéiques dans l'ECP avec la distribution des quantités de dépôt mesurées expérimentalement lors des différents profils thermiques.

iii) J'ai développé et validé un modèle de Mécanique des Fluides Numérique simulant la dénaturation chaude de la BLG dans un échangeur de chaleur à plaques.

iv) Enfin, j'ai participé et réfléchi au développement d'un modèle par analyse dimensionnelle visant à modéliser la masse de dépôt. Ce modèle est assez générique puisqu'il rassemble la plupart de nos essais d'encrassement avec des solutions de lactosérum. Il a la particularité d'intégrer à la fois des influences du produit et du procédé et a été validé pour différents types d'assemblages protéiques, différentes concentrations en calcium et en BLG, différentes surfaces d'échange, temps d'essai, débits, profils thermiques. Cet article en soumission a fait l'objet de retours encourageant suite à sa première évaluation et devrait être accepté prochainement.