



HAL
open science

Instabilités de Rayleigh-Bénard-Marangoni, induites par évaporation, en régime transitoire. Applications aux solutions polymères

Benoît Trouette

► **To cite this version:**

Benoît Trouette. Instabilités de Rayleigh-Bénard-Marangoni, induites par évaporation, en régime transitoire. Applications aux solutions polymères. Mécanique [physics.med-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2010. Français. NNT: . tel-00598835

HAL Id: tel-00598835

<https://theses.hal.science/tel-00598835>

Submitted on 7 Jun 2011

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.

n° d'ordre : 10100

UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD 11
UFR Sciences

THÈSE

présentée pour l'obtention du grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD 11

Spécialité : Dynamique des Fluides et Energétique

par

Benoît TROUETTE

INSTABILITÉS DE RAYLEIGH-BÉNARD-MARANGONI,
INDUITES PAR ÉVAPORATION,
EN RÉGIME TRANSITOIRE.

– APPLICATION AUX SOLUTIONS POLYMÈRES –

Soutenue le 09 décembre 2010 devant le jury composé de

Alain Bergeon	Professeur Université Toulouse 3	Rapporteur
Claudine Dang Vu-Delcarte	Professeur Université Paris-Sud 11	Directeur de thèse
Philippe Gondret	Professeur Université Paris-Sud 11	Examineur
Béatrice Guerrier	Directrice de Recherche CNRS	Directeur de thèse
Marc Médale	Professeur Ecole Polytechnique de Marseille	Rapporteur
Yahya Rharbi	Chargé de Recherche CNRS	Examineur

à mon père

Remerciements

Je remercie en tout premier lieu Claudine Dang Vu-Delcarte pour m'avoir encadré et guidé tout au long de ces trois années de thèse. Sa patience, sa pédagogie, et la sincérité de son jugement ont beaucoup contribué à l'aboutissement de ce travail.

Ma gratitude s'adresse aussi à Béatrice Guerrier, pour sa disponibilité, son regard critique, et le co-encadrement de mes recherches.

Je suis reconnaissant envers Monsieur Alain Bergeon et Monsieur Marc Médale d'avoir évalué mon travail. Leurs retours ont ouvert d'autres axes d'étude. Je remercie également Monsieur Yahya Rharbi d'avoir aimablement participé au jury de thèse et Monsieur Philippe Gondret de l'avoir présidé avec attention.

Mes remerciements s'adressent également à Frédéric Doumenc, Gérard Labrosse et Eric Chénier. Leurs participations, leurs disponibilités et leurs analyses m'ont énormément aidé et motivé.

Je tiens à remercier Patrick Le Quéré de m'avoir accueilli au LIMSI et donné les moyens de mener à bien ce travail.

Merci au centre de Ressources Informatique de l'Université de Paris-Sud 11 pour la mise à disposition de ses ressources.

Un grand merci à toutes les personnes du LIMSI avec qui j'ai pu échanger au cours de ces trois années de thèse, et aussi à l'ensemble des doctorants que j'ai pu cotoyer. Une mention spéciale à AR, BP, JB, JT, LK, MC, NP et SW.

Enfin, mes pensées vont à mes parents, mes frères et à l'ensemble de ma famille. Ainsi qu'à Jean-Charles, Matthieu, Nico², Thomas et tous ceux qui ont été présents. Je réserve une mention toute particulière à Romy, qui malgré ma "bonne humeur" quotidienne m'a soutenu et supporté tout au long de ces trois années.

Table des matières

Tables des matières	i
Introduction	1
I Modèle thermique	9
Nomenclature de la partie thermique	11
1 Modèle et méthodes numériques	13
1.1 Description physique	13
1.1.1 Hypothèses	13
1.1.2 Modèle mathématique	14
1.1.3 Equations adimensionnées	17
1.2 Méthodes numériques	19
1.2.1 Discrétisation	19
1.2.2 Découplage vitesse-pression	20
1.2.3 Méthode de résolution du système	21
1.2.4 Problème lié à l'inversion du laplacien réduit	23
1.2.5 Validations	30
2 Convection transitoire 3D d'origine thermique	35
2.1 Outils	35
2.1.1 Décomposition de Voronoï	35
2.1.2 Méthodologie de recherche des seuils de transition	36
2.2 Exemples	38
2.2.1 Faibles épaisseurs, convection due à l'effet Marangoni	39
2.2.2 Grandes épaisseurs, convection due à la poussée d'Archimède	44
2.3 Influence des conditions initiales	47
2.3.1 Amplitude	48
2.3.2 Structure	49
2.4 Détermination des seuils de transition	54
2.4.1 Régimes d'écoulement	54
2.4.2 Influence de la perturbation initiale	55
2.4.3 Influence du confinement	57
2.4.4 Comparaison avec des résultats antérieurs	57
2.4.5 Conclusion	59
2.5 Motifs convectifs	60

2.6	Simulations des expériences tests	65
2.6.1	Cas n° 1	66
2.6.2	Cas n° 2 et 3	68
2.6.3	Conclusion	68
2.7	Synthèse de la partie thermique	69
 II Modèle solutal		71
Nomenclature de la partie solutale		73
 3 Modèle et méthodes numériques		75
3.1	Problème physique et modèle mathématique	75
3.1.1	Hypothèses	75
3.1.2	Equations de l'écoulement	78
3.1.3	Conditions aux limites	79
3.1.4	Equations adimensionnées	81
3.2	Méthodes numériques	82
3.2.1	Méthode	83
3.2.2	Validation par une solution analytique	90
 4 Convection solutale transitoire et seuils de stabilité		95
4.1	Problème diffusif	96
4.1.1	Evolution de la concentration pour deux situations modèles	96
4.1.2	Modèle de milieu semi-infini	97
4.1.3	Exemple de profils de concentration	98
4.1.4	Effet de la concentration initiale	98
4.2	Exemples d'états convectifs	100
4.2.1	Illustration d'évolutions spatio-temporelles	100
4.2.2	Influence de la forme de la perturbation : temps caractéristique du passage à un état convectif	104
4.2.3	Influence de l'amplitude de la perturbation sur la cas n° 1	105
4.3	Determination des seuils de transition	108
4.3.1	Influence de l'amplitude de la perturbation	108
4.3.2	Influence du nombre de Schmidt	110
4.3.3	Influence de la concentration initiale de solvant	111
4.4	Comparaison aux travaux expérimentaux	114
4.4.1	Problème solutal de type Rayleigh-Bénard ou Bénard-Marangoni?	114
4.4.2	Comparaison des cartes de stabilité solutale et thermique	115
4.4.3	Problème solutal : simulation des cas tests n° 1 et 2	116
4.4.4	Comparaison thermique/solutal	125
4.5	Synthèse de la partie solutale	128
 Conclusion générale et perspectives		131
 Annexes		135

A Compléments pour la résolution du système thermique	135
A.1 Algorithme de projection-diffusion	135
A.2 Détails de la résolution dans l'espace spectral Fourier	135
B Articles	139
Bibliographie	173

Introduction

L'évaporation d'un liquide, qui correspond à la transition de l'état liquide à l'état gazeux, joue un rôle important dans de nombreux domaines comme dans les procédés de distillation ou dans les échangeurs thermiques. Un autre champ d'application est le séchage de films minces (peintures, encres, vernis). Dans la nature, on peut par exemple observer sa conséquence après le séchage d'un lac d'eau salée.

Il est bien connu que l'évaporation est un processus endothermique provoquant un refroidissement du liquide au niveau de sa surface libre. Un gradient vertical de température est alors créé dans l'épaisseur de liquide et il peut être à l'origine de la déstabilisation de l'état conductif. Les forces liées à cette déstabilisation sont dues aux gradients de tension superficielle (effet Marangoni) et de masse volumique (poussée d'Archimède), toutes deux variant avec la température. Depuis les expériences de Bénard en 1900 [6], ces deux mécanismes d'instabilités ont été étudiés par de nombreux chercheurs. La configuration la plus classique considère une couche de liquide soumise à une différence imposée de températures. Le cas piloté par la poussée d'Archimède donne lieu à l'instabilité de Rayleigh-Bénard, étudiée par Rayleigh (1916) [60]. Les variations de tension de surface entraînent une convection de type Bénard-Marangoni, dont l'étude théorique est due à Pearson (1958) [57]. La différence imposée de températures, associée à l'épaisseur et aux propriétés physiques du fluide, permet de définir les nombres adimensionnés de Rayleigh (Ra) et Marangoni (Ma). La détermination théorique des nombres critiques Ra_c et Ma_c , menant à une déstabilisation du système, est en très bon accord avec les observations expérimentales (Chandrasekhar (1961) [16]).

En présence d'un fluide binaire, dont un seul des composants est volatile, l'évaporation en surface libre génère un gradient vertical de concentration qui peut également être à l'origine d'instabilités. Comme pour la température, la masse volumique et la tension de surface dépendent de la concentration. Les instabilités induites par évaporation pourront alors être d'origines thermique et/ou solutale.

Convection établie de type Bénard-Marangoni

La littérature liée aux études du problème de Bénard-Marangoni thermique est assez dense (voir par exemple Nield (1964) [52], Koschmieder (1993) [39], Colinet *et al.* (2001) [22]). Dans la grande majorité des cas une différence de températures ou un flux de chaleur est imposée au système de façon à pouvoir observer un régime convectif établi (stationnaire ou périodique). Outre la détermination des seuils de transition, d'autres contributions portent notamment sur la structure de l'écoulement et les motifs convectifs observés au voisinage du seuil. Ainsi Koschmieder et Prahl (1989) [40] montrent

expérimentalement les différentes structures convectives selon que la cavité est cylindrique ou carrée. Ces résultats ont été retrouvés numériquement par Médale et Cerisier (2002) [48] qui étendent l'étude pour des cavités triangulaires et hexagonales. Lorsque la cavité permet d'observer plusieurs rangées de cellules, les cellules internes ont une géométrie hexagonale. Une analyse expérimentale et numérique de convection Bénard-Marangoni est également proposée par Pasquetti *et al.* (2002) [54]. Les auteurs mettent en évidence l'influence de la forme de la perturbation initiale sur les structures stables obtenues. Pour des cavités carrées ou faiblement rectangulaires, Bergeon *et al.* (2001) [8] font un suivi de bifurcations d'un état stationnaire de type Bénard-Marangoni hors gravité. Les motifs obtenus sont comparés aux cas expérimentaux [40].

La prise en compte d'effets solutaux est moins répandue. La variation de la concentration peut être due aux conditions aux limites (flux de concentration) ou à l'effet Soret (variation de la concentration avec la température). Dans ce dernier cas, Bergeon et Knobloch (2004) [9], montrent (toujours pour des cavités carrées) la présence d'une convection thermocapillaire oscillante.

Convection établie induite par évaporation

En présence d'évaporation, et contrairement aux études classiques du problème de Bénard-Marangoni, il n'est pas nécessaire d'imposer au liquide un gradient de température ou de concentration pour déstabiliser le système.

Un certain nombre d'études numériques et théoriques dans cette thématique, reposent sur un couplage entre le liquide et le gaz et utilisent un modèle bi-couches [49, 50, 53, 45]. Pour certaines études, la phase gazeuse est composée soit de la vapeur du liquide uniquement (voir par exemple Higuera (1987) [35], Colinet *et al.* (2001) [22]), soit d'un gaz inerte. Les modèles bi-couches considèrent une phase gazeuse couplée à la phase liquide par des flux de chaleur (et/ou de masse) ainsi que par une condition d'équilibre dynamique. Dans les modèles mono-couche seul le liquide est considéré, les transferts avec le milieu extérieur sont définis par un coefficient d'échange.

En considérant des effets thermiques uniquement, Merkt et Bestehorn (2003) [49] étudient un système dans lequel l'évaporation est forte. Une analyse de stabilité linéaire est faite en utilisant un modèle bi-couches. Les parois horizontales sont maintenues à la même température. Les nombres d'ondes (k) et Marangoni critique (Ma_c) sont alors calculés en fonction du flux d'évaporation (qui dépend lui même de la température imposée). Les auteurs proposent également un modèle mono-couche (le gaz est considéré comme passif), pour lequel des simulations 3D (périodiques dans les directions horizontales) sont faites dans le but d'étudier la structure de l'écoulement en fonction du nombre de Biot. La transition de cellules hexagonales à carrées, déjà mise en évidence par Eckert *et al.* (1998) [28] pour un fluide non volatile, est observée au voisinage du seuil de transition.

Toujours pour un modèle bi-couches, Moussy *et al.* (2004) [50] font une analyse de stabilité linéaire d'un problème de type Bénard-Marangoni. Les auteurs mettent en évidence les influences respectives du taux d'évaporation et de la déformation de l'interface sur les courbes de stabilité.

Ozen et Narayanan (2004) [53] font quant à eux une analyse de stabilité linéaire d'un modèle bi-couches pour déterminer les influences respectives de l'évaporation et de la dynamique de la phase gazeuse sur la stabilité de l'interface liquide/gaz. L'écoulement

dans le liquide déforme l'interface tandis que le flux d'évaporation la stabilise.

Les modélisations bi-couches sont beaucoup plus lourdes numériquement, ce qui a amené plusieurs auteurs à se ramener à un modèle mono-couche. C'est cette dernière démarche qui a été adoptée dans cette thèse.

Pour une convection classique de type Bénard-Marangoni (sans évaporation), Pérez-García *et al.* (1998) [58] discutent des hypothèses permettant de réduire le modèle bi-couches au modèle mono-couche. Les transferts avec l'air ambiant sont alors définis par un coefficient de transfert. Pour un problème d'évaporation un modèle simplifié est proposé et étudié par Dondlinger *et al.* (2005) [24].

L'ensemble de ces études permettent l'observation de régime stationnaire ou quasi-stationnaire. Expérimentalement, c'est également le cas de Berg *et al.* (1966) [7] qui montrent, pour des liquides purs ou binaires, la dépendance des structures convectives avec l'épaisseur de la solution. Ils s'intéressent également à l'effet de la contamination de la surface libre, et donc du changement de tension de surface, sur les motifs convectifs.

Plus récemment, Mancini et Maza (2004) [46] ont également fait une étude de structures convectives en régime stationnaire. Ces structures apparaissent dans une plage d'épaisseur de liquide bien définie. Les auteurs mettent aussi en avant la transition de motifs carrés à hexagonaux en fonction de l'épaisseur.

Les études traitant du couplage thermique/solutal sont plus rares. Nous retiendrons les récents travaux théoriques et numériques de Machrafi *et al.* (2010) [45], qui portent sur une configuration légèrement différente de celle-ci, la solution volatile étant composée d'eau et d'éthanol, mais les auteurs considèrent les mêmes effets déstabilisants. L'effet Marangoni et la poussée d'Archimède peuvent être d'origines thermique et solutale. Dans un premier temps un modèle bi-couches est utilisé. Un état quasi-stationnaire, dans lequel l'évolution de l'épaisseur de liquide est lente par rapport aux autres échelles de temps du problème, est observable et permet d'effectuer d'une analyse de stabilité linéaire. Tous les effets déstabilisants, thermiques et solutaux, sont comparés (poussée d'Archimède, effet Marangoni, effet Soret) et les auteurs soulignent la prédominance de l'effet Marangoni lié aux transferts de masse.

Dans un deuxième temps, le système est réduit à un modèle mono-couche. La comparaison des seuils obtenus numériquement avec ceux prédits par le modèle de Pearson [57], permet de mettre en évidence la faible influence de la dynamique de la phase gazeuse sur le déclenchement d'instabilités.

Nous insistons sur le fait que tous ces travaux portent sur l'étude de l'état convectif une fois le régime établi obtenu : l'écoulement possède un attracteur de la dynamique pour lequel la convection peut être stationnaire, instationnaire ou périodique. (Il est également possible d'observer un régime quasi-stationnaire où l'évolution des variables est lente par rapport au temps caractéristique du système.) Il est important de faire la distinction entre un régime établi instationnaire et un régime transitoire. Ce dernier correspond à la dynamique obtenue entre le temps initial et le temps où le régime établi est atteint. Cet aspect transitoire est rarement étudié.

Convection en régime transitoire

Nous retiendrons les travaux numériques de Kang et Choi (1997) [36], qui étudient la stabilité d'une couche liquide brutalement refroidie au niveau de sa surface libre. Ils utilisent deux méthodes afin de déterminer le temps critique d'apparition de l'état convectif : la théorie de propagation (« *propagation theory* ») et une méthode « *Frozen-Time* ». Aux temps courts, où l'évolution du profil de température est fortement non-linéaire, la théorie de propagation est efficace pour déterminer le temps critique. Aux temps longs, la méthode *Frozen-Time*, qui se base sur l'hypothèse que les perturbations du système évoluent bien plus rapidement que l'état de base, donne de meilleurs résultats.

Notons que cet aspect transitoire a été étudié expérimentalement par Bassou et Rharbi (2009) [2] pour une solution polymère (PS/Toluène). Pour des épaisseurs de liquide de l'ordre du millimètre, ils observent une convection d'origine solutale et étudient le rôle de l'effet Marangoni dû aux transferts de masse sur la formation de structures convectives.

Dans cette thèse nous étudions numériquement le séchage d'une solution solvant/polymère (PIB/Toluène), et plus particulièrement les instabilités induites par l'évaporation du solvant. Le seul état stable possible correspond au dépôt final de soluté. Cet état solide, évidemment stable du point de vue d'instabilités hydrodynamiques, est le seul attracteur. Entre le temps initial, pour lequel la solution (au repos) est soumise à une contrainte, et le temps final où elle est en équilibre stable, la convection (si elle apparaît) ne peut être que transitoire.

Le travail a porté principalement sur trois points :

- Le rôle respectif des phénomènes thermiques et solutaux
- Le caractère transitoire du problème
- L'influence de l'évolution de la viscosité de la solution avec la concentration en polymère.

Certains aspects ont été par contre volontairement simplifiés. Ainsi nous ne considérons que des modèles mono-couche et les transferts avec l'air ambiant sont représentés par des coefficients d'échange thermique et massique.

Bien que le travail présenté dans ce manuscrit concerne de façon générale le séchage de solutions polymères, il s'appuie plus particulièrement sur les résultats obtenus à l'issue d'une campagne expérimentale effectuée précédemment au laboratoire FAST et décrite en [65]. Nous en rappelons les principaux aspects, ce qui va nous permettre d'introduire la méthodologie générale adoptée dans ce travail.

Les expériences présentées en [65] concernent le séchage de solutions de Polyisobutylène/Toluène (PIB/Toluène) à température ambiante et sous hotte aspirante. La solution est placée dans une coupelle cylindrique de diamètre 110 mm pour la plupart des expériences. Initialement, le liquide est à température ambiante ($T_0 \simeq 22^\circ C$) et sa concentration est homogène. La plage d'épaisseur initiale va de 1 à 20 mm. La fraction volumique initiale de polymère varie entre 0 (solvant pur) et 10%. Il est bien connu que la viscosité d'une solution polymère varie très fortement avec la concentration en soluté. Ceci est illustré sur la figure 1(a) qui donne l'évolution de la viscosité en fonction de la fraction volumique de polymère. Nous observons par exemple trois ordres de grandeur entre une solution diluée à 0.1% et une solution diluée à 10%. Ce point spécifique des fluides complexes et notamment des solutions polymères sera donc un des aspects développés dans notre travail. Tous les autres paramètres expérimentaux étant gardés constants, les

deux paramètres de contrôle du jeu d'expériences sont l'épaisseur initiale et la concentration initiale, et donc la viscosité initiale. Outre une présentation en fonction des nombres adimensionnels caractéristiques du problème, beaucoup de nos résultats seront présentés dans le plan de ces deux grandeurs, épaisseur/viscosité, de façon à faire des comparaisons avec les résultats expérimentaux.

La coupelle repose sur une balance, ce qui permet d'évaluer le flux d'évaporation au cours du temps. La figure 1(b) donne un exemple de cinétique typique de séchage, obtenue pour une épaisseur initiale de 4 mm et une fraction volumique initiale de polymère de 0.05%. Elle fait apparaître plusieurs régimes caractéristiques qui seront successivement abordés dans ce travail :

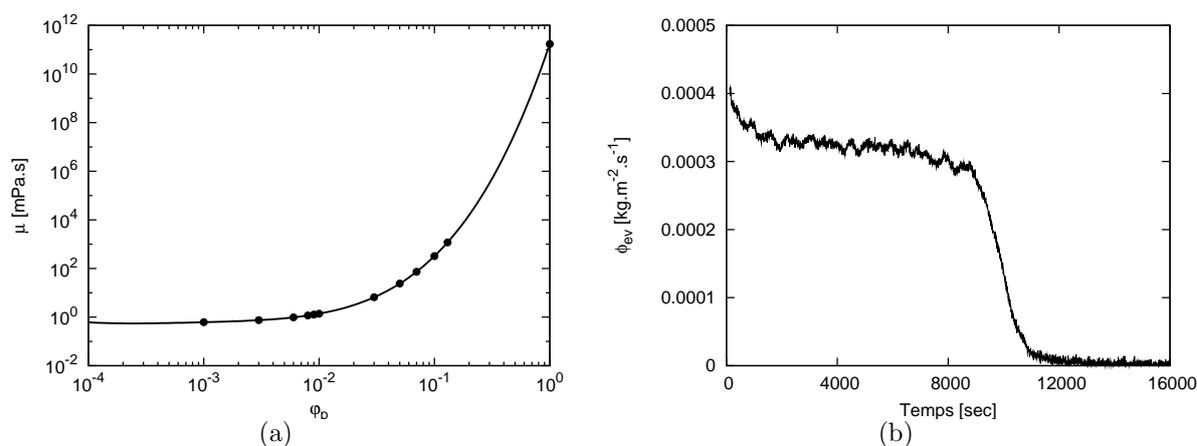


Figure 1 – (a) Evolution de la viscosité en fonction de la fraction volumique de polymère [31]. (b) Exemple d'évolution du flux d'évaporation au cours du temps pour une solution de PIB/Toluène. Données expérimentales (Fast et [65]). Paramètres : épaisseur initiale de 4 mm et $\varphi_p = 0.05\%$.

1. Transitoire thermique : immédiatement après le versement de la solution, l'évaporation du solvant induit une baisse de température de la surface. La perturbation se propage ensuite au cœur du liquide. Puis la solution atteint de nouveau une température homogène, qui dans les conditions expérimentales est de l'ordre de $5^\circ C$ en dessous de la température ambiante. Ceci se traduit par une diminution du flux d'évaporation qui sur l'exemple présenté varie de 0.0004 à environ $0.00032 \text{ kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ sur environ 1000 secondes. Ce transitoire thermique est clairement mis en évidence par des observations par caméra Infra-Rouge (IR) de la surface.

Le nombre de Lewis ($Le = \tau_{th}/\tau_{sol} = \alpha/D$, avec D la diffusivité massique), qui compare les temps caractéristiques des transferts de chaleur et de masse, est grand pour ce système, de l'ordre de 10^3 . Les phénomènes thermique et solutal sont donc supposés jouer à des temps très différents. Nous considérerons alors uniquement les aspects thermiques lors de cette première phase (ce point sera rediscuté à la fin de ce travail). **Ceci fait l'objet de la partie I de la thèse.** Le temps de ce transitoire thermique étant très faible par rapport au temps total du séchage, nous adoptons certaines hypothèses simplificatrices et nous négligeons par exemple les variations d'épaisseur et de viscosité. Au cours de ce transitoire, l'épaisseur et la viscosité de la solution n'ont en effet pas le temps de trop

varier : diminution de 0.20% pour l'épaisseur et augmentation inférieure à 1% pour la viscosité [65].

2. Plage à flux d'évaporation constant : Transitoire solutal

A l'issue de ce transitoire thermique, on observe une longue plage où le flux d'évaporation est quasiment constant. Ceci est lié à l'une des caractéristiques des solutions polymères pour lesquelles l'activité reste proche de 1 jusqu'à des concentrations en soluté élevé. Dans le cas du PIB/Toluène, l'activité est supérieure à 0.9 jusqu'à des fractions volumiques en polymère de l'ordre de 60%. La solution s'évapore alors presque comme du solvant pur, ce qui explique le plateau de flux d'évaporation observé, qui sur cet exemple s'étend jusqu'à environ 8000 secondes. **Cette phase à flux d'évaporation constant fait l'objet de la partie II de la thèse.** La température étant homogène, le problème y est purement solutal. Contrairement à la première phase, la diminution de l'épaisseur et l'évolution de la viscosité de la solution ne peuvent plus être négligées. Nous gardons par contre l'hypothèse d'une interface indéformable et discutons de la validité de cette hypothèse au cours du séchage.

On observe ensuite une nette diminution du flux d'évaporation lorsque la concentration en polymère en surface augmente, ce qui entraîne une chute de l'activité. Ce domaine se caractérise également par une importante augmentation de la viscosité et la fin du séchage est dominée par des phénomènes de diffusion massique très lents. Il ne sera pas considéré ici.

Outre la pesée de la solution, des observations ont été réalisées au moyen d'une caméra Infra-Rouge et de traceurs. Les moyens expérimentaux utilisés limitent les vitesses minimales détectables à environ 0.1 mm/s. Un exemple de champ de température¹ en surface libre est montré en figure 2 pour une épaisseur de 8 mm.

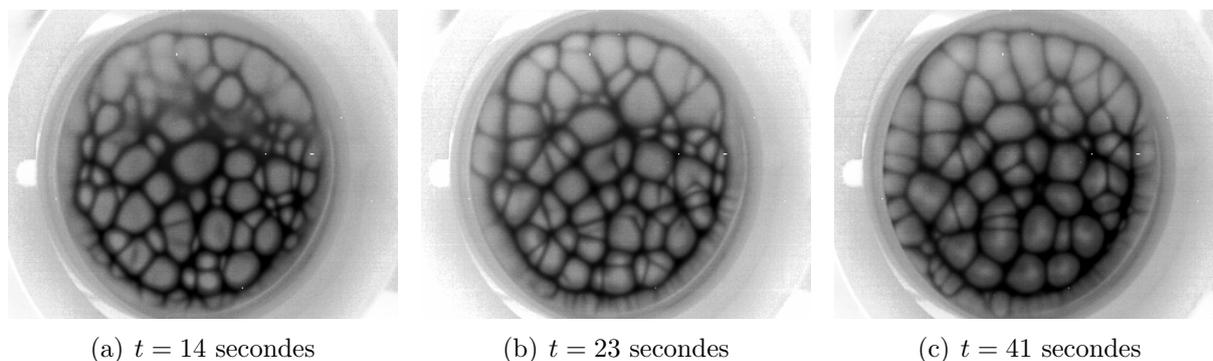


Figure 2 – Exemple de champs de température observés avec une caméra IR. Des cellules de convection sont visibles. Le fluide chaud remonte au centres de cellules (couleurs claires, températures chaudes), puis redescend en périphérie (couleurs sombres, température froides). Configuration expérimentale (caméra IR, Fast). Paramètres : $e_i = 8$ mm et $\varphi_p = 0.05\%$.

Nous pouvons observer des cellules de convection de type Bénard-Marangoni, plus ou moins régulières, qui évoluent au cours du temps. Pour des épaisseurs plus importantes ($e \geq 10$ mm), des structures plus complexes, combinant cellules de type Bénard-Marangoni et rouleaux de convection de type Rayleigh-Bénard, sont observés. Ces motifs convectifs

¹Communication B. Guerrier, F. Doumenc

sont visibles dans la plage de temps où les effets thermiques sont présents et semblent donc être la signature d’une convection induite par les gradients de température. La figure 3 rassemble les résultats obtenus pour différentes épaisseurs et viscosités initiales.

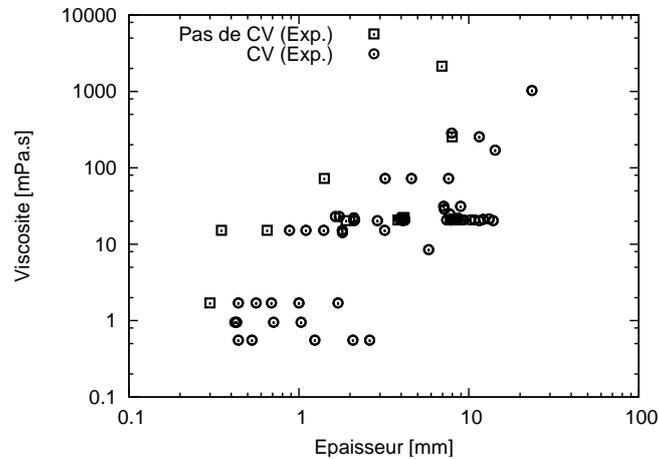


Figure 3 – Carte d’observation expérimentale de la convection en fonction de l’épaisseur et de la viscosité de la solution. Les cercles représentent les cas pour lesquels un état convectif est observé (avec caméra IR ou traceurs). (carte extraite de [65]).

Des expériences réalisées par d’autres équipes mettent par contre en évidence des phénomènes convectifs liés à des gradients solutaux. C’est par exemple le cas des expériences développées par Bassou et Rharbi [2] sur un système proche du nôtre (solution de PS/Toluène) et qui ont observé à l’aide d’un microscope confocal des cellules convectives pour des solutions de faible épaisseur (de 0.25 à 1.4 mm), avec des vitesses de l’ordre de quelques dizaines de microns/s.

De façon générale nous nous sommes donc posés les questions suivantes : quels sont les phénomènes dominants (thermique versus solutal, Rayleigh-Bénard versus Bénard-Marangoni) ? à quel moment du séchage ? et comment ceci varie en fonction des nombres adimensionnés qui caractérisent le problème ?

L’objectif de cette thèse est de donner des éléments de réponse à ces questions en réalisant des simulations numériques. Ce travail a fait l’objet d’une collaboration entre trois équipes de recherche : Frédéric Doumenc et Béatrice Guerrier du laboratoire FAST², Eric Chénier du MSME³, et Claudine Dang-Vu Delcarte du LIMSI.

Le problème thermique avait donné lieu précédemment à une première étude numérique (en géométrie bi-dimensionnelle cartésienne), due à Touazi *et al.* (2010) [64], dans laquelle des simulations numériques non-linéaires ont été effectuées. Ce travail a notamment permis de retrouver la carte de stabilité obtenue expérimentalement et donc de confirmer la prépondérance des effets thermiques en début de séchage. Les mécanismes d’instabilité sont l’effet Marangoni pour des petites épaisseurs et la poussée d’Archimède pour les épaisseurs plus importantes. Une étude de lois d’échelles, estimant les vitesses et gradients de température en fonction de différents paramètres est également proposée. Dans

²Fluides, Automatique et Systèmes Thermiques (FAST), Orsay, France

³Modélisation et Simulations Multi-Echelles, Université Paris-Est, Marne-la-Vallée, France

le même temps, une étude de stabilité linéaire de ce problème a été menée par Doumenc *et al.* (2010) [26]. Une méthode de stabilité non-normale, qui tient compte de l'aspect transitoire, est introduite et confirme la carte de stabilité obtenue.

Mon apport dans le cadre de la première partie (problème thermique) a été l'extension du problème 2D à une géométrie cylindrique 3D afin de mieux caractériser les structures convectives et leur évolution temporelle. Je suis parti pour cela d'un code pseudo-spectral développé précédemment au LIMSIS pour l'étude de d'instabilités thermocapillaires en configuration de zone-flottante [12].

Certaines difficultés rencontrées lors de la modification des conditions aux limites pour adapter le code à notre problème ont conduit à une collaboration ponctuelle avec Gérard Labrosse (LIMSIS).

Pour la partie II (problème solutal), je suis parti d'un code 2D en géométrie cartésienne, en volumes-finis pour un maillage mobile (formulation Arbitrary Lagrangian-Eulerian), et dont la base a été développée au MSME. Les procédures numériques et les tests de validation des deux codes sont présentées en section 1.2 (problème thermique) et 3.2 (problème solutal). Nous avons volontairement séparé ces parties numériques de la présentation des modèles et des résultats : ces deux sections peuvent donc être omises pour une lecture centrée sur les résultats.

D'autre part, les deux parties développent une démarche proche : le modèle et les hypothèses simplificatrices caractéristiques des phases thermique ou solutale sont tout d'abord présentés. Ceci permet de dégager le quadruplet $(Bi, Pr, Ma_{th}, Ra_{th})$ ou quintuplet $(\varphi_{si}, Pe_{int}, Sc, Ma_{sol}, Ra_{sol})$ de nombres adimensionnels qui permettent de décrire le système.

Ces deux problèmes étant par nature transitoire, il est important d'étudier l'impact des conditions initiales sur le développement éventuel de phénomènes convectifs. Ce point est largement analysé, en regardant notamment l'influence de l'amplitude ou du tirage caractérisant la perturbation aléatoire sur l'évolution temporelle des variables d'état. De même, le choix d'un critère adéquat permettant de caractériser le déclenchement d'une convection « significative » est étudié.

Ces études préliminaires montrent que dans les deux problèmes, thermique et solutal, il est possible de mener une étude de stabilité, en ce sens que l'on peut délimiter les domaines stable et instable pour la solution diffusive transitoire. En effet, la zone frontière séparant ces deux domaines, et qui dépend des conditions initiales, est « fine » comparée au large domaine de variation des nombres adimensionnels étudiés. Dans le cas solutal, nous avons systématiquement comparé des simulations à viscosité constante ou variable de façon à mettre en évidence le rôle de ce paramètre.

Deux cas tests expérimentaux sont simulés en détail dans l'objectif de comparer simulations et expériences. La comparaison thermique/solutal est finalement réalisée et fait l'objet de la dernière section de ce manuscrit. Cette comparaison porte sur les temps de déclenchement de la convection, sur les longueurs d'onde et sur l'ordre de grandeur des vitesses obtenues.

Les principales conclusions sont synthétisées à l'issue de chacune des deux grandes parties (modèle thermique et solutal). Les perspectives de ce travail sont développées à la fin du manuscrit.

Première partie
Modèle thermique

Principales notations du problème thermique

Indices et exposants

0 ou i	état initial
c	valeurs de transition
g	phase gazeuse
int	interface
p	polymère
s	solvant
∞	valeur à l'infini

Scalars

a	activité de la solution	<i>sans unité</i>
c_p	chaleur spécifique	$J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$
e	épaisseur de la solution	m
g	accélération de pesanteur	$m \cdot s^{-2}$
h_m	coefficient d'échange massique	$m \cdot s^{-1}$
H_{th}, h_{th}	coefficients d'échange thermique	$W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}$
L	chaleur latente de vaporisation	$J \cdot kg^{-1}$
M	masse molaire	$g \cdot mol^{-1}$
N	nombre de réalisations	<i>sans unité</i>
m	mode azimutal	<i>sans unité</i>
p	pression dans le liquide	Pa
P_v	pression de vapeur saturante	Pa
R	rayon de la coupelle	m
R_m	constante des gaz parfaits	$J \cdot mol^{-1} \cdot K^{-1}$
T	température	K
t	temps	s
\mathcal{U}	vitesse caractéristique de l'écoulement	$m \cdot s^{-1}$
u	composante horizontale de la vitesse	$m \cdot s^{-1}$
v	composante azimutale de la vitesse	$m \cdot s^{-1}$
w	composante verticale de la vitesse	$m \cdot s^{-1}$

Scalars (suite)

α	diffusivité thermique	$m^2 \cdot s^{-1}$
β	coefficient d'expansion thermique	K^{-1}
δ	épaisseur de perturbation	m
ΔT_s	écart de température entre le temps initial et final	K
γ	coefficient thermique de tension superficielle	$N \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$
κ	conductivité thermique du fluide	$W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$
ρ	masse volumique	$kg \cdot m^{-3}$
σ	tension superficielle	$N \cdot m^{-1}$
λ	longueur d'onde	m
μ	viscosité dynamique de la solution	$Pa \cdot s$
ν	viscosité cinématique de la solution	$m^2 \cdot s^{-1}$
φ	fraction volumique	<i>sans unité</i>
Φ_{ev}	flux massique d'évaporation	$kg \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$
Θ	température réduite	<i>sans unité</i>

Paramètres adimensionnels

$A = R/e$	facteur de forme
$Bi = H_{th}e/\alpha$	nombre de Biot
$Ma = \gamma\Delta T_s e/\mu\alpha$	nombre de Marangoni
$Pe = Ue/\alpha$	nombre de Péclet
$Pr = \nu/\alpha$	nombre de Prandtl
$Ra = g\beta\Delta T_s e^3/\nu\alpha$	nombre de Rayleigh

Paramètres numériques

a	amplitude la perturbation
α	paramètre de mapping
Δt	pas de temps
N_r	fréquence de coupure radiale
N_ϕ	fréquence de coupure azimutale
N_z	fréquence de coupure axiale

Vecteurs

$(\mathbf{e}_r, \mathbf{e}_\phi, \mathbf{e}_z)$	vecteurs de base en coordonnées cylindriques
\mathbf{e}_r	vecteur unitaire de l'axe radial
\mathbf{e}_ϕ	vecteur unitaire de l'axe azimutal
\mathbf{e}_z	vecteur unitaire de l'axe vertical
\mathbf{n}	vecteur normal
\mathbf{u}	vecteur vitesse
\mathbf{r}	vecteur position

Chapitre 1

Modèle et méthodes numériques

La première section de ce chapitre présente le modèle utilisé pour décrire le problème thermique.

Dans la seconde section sont introduites les méthodes numériques utilisées pour résoudre le système d'équations établi. La section 1.2.4 met en évidence la perte de l'ellipticité de l'opérateur polaire discret associé à des conditions aux limites de type Neumann et propose une alternative à ce problème.

1.1 Description physique

On utilise un modèle simplifié qui s'appuie sur les observations expérimentales effectuées au sein du laboratoire FAST, qui mettent en évidence l'apparition de cellules convectives d'origine thermique dans les toutes premières secondes de l'expérience, c'est-à-dire pour des temps très courts pour lesquels la physique est majoritairement pilotée par les transferts thermiques [65]. (Nous reviendrons sur ce point lors de la conclusion de ce travail en section 4.4.4.) Des cellules de convection peuvent être engendrées par des variations de masse volumique (instabilité de type Rayleigh-Bénard) et/ou par des variations de tension de surface (instabilité de type Bénard-Marangoni), dues à des inhomogénéités volumiques ou surfaciques du champ de température.

Ce modèle a déjà été utilisé dans le cadre de simulations numériques bi-dimensionnelles [64] ainsi que lors d'étude de stabilité linéaire non-normale [26]. L'objectif de la première partie de ce travail est d'étendre les travaux antérieurs à une géométrie 3D.

1.1.1 Hypothèses

Le fluide est placé dans un récipient cylindrique de rayon R et d'épaisseur e dont les parois sont adiabatiques. Un schéma du domaine d'étude est présenté en figure 1.1. Le liquide est en contact, au niveau de sa surface libre, avec de l'air à température ambiante (notée T_0).

Cette première partie ne concerne que le régime transitoire thermique qui se développe pendant des temps très courts (comparés au temps total du séchage), et des hypothèses simplificatrices sont adoptées. Elles sont similaires aux études antérieures et nous les rappelons brièvement ci-dessous :

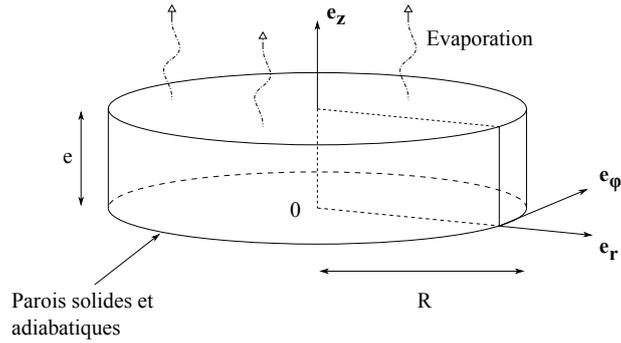


Figure 1.1 – Schéma du domaine d'étude

- la quantité de liquide évaporée durant le temps caractéristique de diffusion thermique est très faible par rapport au volume initial. L'épaisseur de la solution sera supposée constante.
- L'interface liquide/gaz est supposée plane et indéformable. Ceci est justifié si les effets dus à la gravité et à la tension de surface s'opposent à la déformation de la surface libre, ce qui se traduit (en utilisant comme référence la vitesse de diffusion) par le nombre de Crispation $Cr \equiv \mu D / \sigma e \ll 1$ et le nombre de Galilée $Ga \equiv g e^3 \rho / \mu D \gg 1$ (Regnier *et al.* [62]). Ces conditions sont vérifiées pour nos expériences. Nous avons vérifié a posteriori que c'est également le cas, loin du seuil de transition, lorsque la vitesse engendrée est bien supérieure à la vitesse de diffusion.
- La concentration initiale de soluté est faible et elle varie peu pendant le régime thermique. Les propriétés physiques utilisées sont donc celles du solvant pur, sauf pour la viscosité qui est très sensible à la concentration en soluté. Pour chaque simulation nous utiliserons une viscosité constante qui dépend de la concentration initiale en soluté.
- Les écarts de température entre le début du séchage et l'état final homogène étant relativement faibles (environ $5^\circ C$), on se place dans le cadre de l'approximation de Boussinesq [13] : les grandeurs physiques sont prises comme constantes à l'exception de la masse volumique et de la tension de surface qui dépendent linéairement de la température dans les termes moteurs de l'écoulement.
- Nous nous limiterons dans cette étude à un modèle mono-couche : la phase gazeuse n'est pas modélisée et les échanges avec le milieu extérieur sont décrits par des coefficients d'échange thermique et massique supposés connus et constants.
- Enfin, le fluide est supposé newtonien, et les équations de Navier-Stokes incompressibles et de l'énergie sont utilisées pour décrire l'évolution de la solution au cours du temps.

Notons que plusieurs de ces hypothèses devront être abandonnées lorsque nous aborderons la convection solutale en seconde partie de ce manuscrit.

1.1.2 Modèle mathématique

Les paramètres dépendant de la température compris dans les forces motrices (poussée d'Archimède et force issue de l'effet Marangoni) sont développés au premier ordre. L'état de référence choisi ici est l'état initial, noté avec l'indice « 0 ». Pour la masse volumique

ρ et la tension superficielle σ , il vient :

$$\begin{aligned}\rho &= \rho_0 (1 - \beta (T - T_0)) \\ \sigma &= \sigma_0 - \gamma (T - T_0).\end{aligned}\tag{1.1}$$

Equations du modèle simplifié

Sous les hypothèses précédentes, les équations de Navier-Stokes incompressibles et de l'énergie s'écrivent :

$$\begin{cases} \nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \\ \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = -\frac{1}{\rho} \nabla p + \nu \Delta \mathbf{u} + \mathbf{f}_{ext} \\ \frac{\partial T}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) T = \alpha \Delta T \end{cases}\tag{1.2}$$

avec $\mathbf{u}(\mathbf{r}, t)$ le champ de vitesse, $p(\mathbf{r}, t)$ le champ de pression et $T(\mathbf{r}, t)$ le champ de température. Le terme de forçage extérieur \mathbf{f}_{ext} contient la poussée d'Archimède :

$$\mathbf{f}_{ext} = g (1 + \beta (T - T_0)) \mathbf{e}_z\tag{1.3}$$

Les propriétés physiques du fluide sont respectivement, la masse volumique ρ , la viscosité cinématique $\nu = \mu/\rho$ et la diffusivité thermique $\alpha = \kappa/\rho c_p$ avec μ la viscosité dynamique, κ la conductivité thermique et c_p la chaleur spécifique.

La viscosité ν est supposée constante mais dépendante de la concentration initiale de polymère. Une loi empirique déduite de mesures faites à l'aide d'un rhéomètre Low Shear 30 (cylindres coaxiaux et déformation imposée) [31] est utilisée (cf. figure 1(a) en page 5).

Pour les expériences auxquelles nous nous référons (concernant le séchage d'une solution PIB/Toluène), les propriétés physiques et les paramètres caractérisant l'évaporation sont répertoriées dans le tableau 1.1.

ρ	κ	α	T_0	H_{th}	L	$\Phi_{ev}(T_0)$	$d\sigma/dT$
865	0.142	0.97×10^{-7}	295	28	396	3.37×10^{-4}	-0.119×10^{-3}

Tableau 1.1 – Tableau récapitulatif des différents paramètres du problème (valeurs correspondant à une expérience typique, exprimées en unité S.I.)

Conditions initiales et aux limites

Pour fermer le système 1.2, il faut lui associer un jeu de conditions aux limites et de conditions initiales.

Conditions initiales

On choisit des conditions initiales proches des conditions expérimentales. La vitesse est supposée nulle :

$$\mathbf{u}(t = 0) = \mathbf{0}\tag{1.4}$$

et le champ de température est homogène égal à la température ambiante :

$$T(t = 0) = T_0 \quad (1.5)$$

Numériquement, si le système n'est pas initialement perturbé, l'amplification des erreurs numériques liées à la méthode utilisée va être à l'origine des instabilités observées. Afin d'éviter cette sensibilité aux paramètres numériques, on choisit de superposer au champ de température initial un champ perturbé d'amplitude choisie. La section 2.3 détaillera par la suite les différentes perturbations utilisées et leurs influences sur l'évolution temporelle des solutions du système 1.2.

Conditions aux limites

Aux parois solides

Les parois de la coupelle en verre, localisées en $r = R$ et $z = 0$, sont supposées adiabatiques. Les conditions aux limites sur les champs de vitesse et de température traduisent l'adhérence et l'adiabaticité. Elles s'écrivent :

$$\begin{cases} \mathbf{u} = \mathbf{0} \\ \frac{\partial T}{\partial \mathbf{n}} = 0 \end{cases} \quad (1.6)$$

En surface libre

Les conditions aux limites hydrodynamiques sont les suivantes :

$$\begin{cases} \mu \frac{\partial u}{\partial z} = \frac{\partial \sigma}{\partial T} \frac{\partial T}{\partial r} \\ \mu \frac{\partial v}{\partial z} = \frac{1}{r} \frac{\partial \sigma}{\partial T} \frac{\partial T}{\partial \phi} \\ w = 0 \end{cases} \quad (1.7)$$

avec σ la tension de surface qui décroît linéairement avec la température. Les deux premières traduisent l'équilibre des forces tangentielles à la surface. La condition $w = 0$ est obtenue en supposant que les variations spatiales du flux surfacique peuvent être négligées par rapport au flux moyen (cf. [26] pour plus de détail).

La condition à la limite en surface libre portant sur le champ de température n'est pas triviale et nécessite un approfondissement. La conservation de l'énergie écrite au niveau de l'interface nous donne :

$$-\kappa \frac{\partial T_{int}}{\partial z} = h_{th} (T_{int} - T_0) - L\Phi_{ev} \quad (1.8)$$

Le premier terme du membre de droite représente le transfert convectif entre la surface libre et l'air ambiant tandis que le second terme modélise l'évaporation du solvant. Le flux d'évaporation Φ_{ev} peut aussi s'écrire :

$$\Phi_{ev} = h_m (\rho_{s,int}^g - \rho_{s,\infty}^g) \quad (1.9)$$

où h_m est le coefficient d'échange massique, $\rho_{s,int}^g$ et $\rho_{s,\infty}^g$ sont les concentrations en solvant dans la phase gazeuse, respectivement à l'interface et à l'infini. Le débit d'air de la hotte

aspirante étant très supérieur au flux d'évaporation, on a $\rho_{s,\infty}^g = 0$. En utilisant la loi des gaz parfaits, on obtient :

$$\Phi_{ev} = h_m \frac{M_s P_{V s,0}(T_{int})}{R_m T_{int}} a(T_{int}, \varphi_{s,int}) \quad (1.10)$$

M_s est la masse molaire du solvant, a son activité, $P_{V s,0}$ la pression de vapeur saturante du solvant pur, $\varphi_{s,int}$ la fraction volumique du solvant à l'interface dans la phase liquide et R_m est la constante des gaz parfaits. Pour les solutions polymères l'activité a est proche de l'unité lorsque la fraction volumique de solvant φ_s est supérieure à 40 % [27]. Compte tenu de la faible gamme de température balayée au cours de l'expérience (quelques degrés), on peut linéariser le flux d'évaporation autour de la température ambiante :

$$\Phi_{ev}(T_{int}) \simeq \Phi_{ev}(T_0) + \left. \frac{\partial \Phi_{ev}}{\partial T} \right|_{T_0} (T_{int} - T_0) \quad (1.11)$$

La condition à la limite thermique peut être écrite sous la forme approchée suivante :

$$-\kappa \left. \frac{\partial T}{\partial z} \right|_{int} = H_{th}(T_{int} - T_0) + L \Phi_{ev}(T_0) \quad (1.12)$$

avec

$$H_{th} = h_{th} + L \left. \frac{\partial \Phi_{ev}}{\partial T} \right|_{T_0} \quad (1.13)$$

1.1.3 Equations adimensionnées

Sont choisies comme grandeurs de référence e pour l'échelle de longueur, la vitesse de diffusion thermique α/e pour l'échelle de vitesse, le temps de diffusion thermique e^2/α pour l'échelle de temps, et $\rho\alpha^2/e^2$ pour l'échelle de pression.

Le seul écart de température disponible est celui entre la température à l'état initial et la température de l'état final stationnaire, notée T_s . En injectant T_s dans 1.12, on obtient :

$$\Delta T_s = T_0 - T_s = \frac{L \Phi_{ev}(T_0)}{H_{th}}. \quad (1.14)$$

On note $\Theta = (T - T_0)/\Delta T_s$ la température réduite. De l'équation 1.14, et avec les données du tableau 1.1 (page 15) on peut calculer $\Delta T_s = 4.8^\circ C$. L'échelle de température utilisée ici est différente de celle utilisée dans les études classiques où l'échelle de température est naturellement l'écart entre les températures imposées.

Avec ce choix de grandeurs de référence, le système 1.2 s'écrit sous la forme adimensionnée¹ suivante :

$$\begin{cases} \nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \\ \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = -\nabla p + \text{Pr} \Delta \mathbf{u} + \text{RaPr} \Theta \mathbf{e}_z \\ \frac{\partial \Theta}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \Theta = \Delta \Theta \end{cases} \quad (1.15)$$

¹Les variables sont sans dimension. Par commodité on écrit directement les variables et les opérateurs sans dimension sans les notations * : $\mathbf{u} = \mathbf{u}^*$, $\frac{\partial}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial z^*}$, ...

avec Pr et Ra les nombres de Prandtl et de Rayleigh, s'écrivant respectivement :

$$Pr = \frac{\nu}{\alpha} \quad \text{et} \quad Ra = \frac{\beta g \Delta T_s e^3}{\nu \alpha},$$

la poussée d'Archimède apparaît dans le nombre de Rayleigh.

Les conditions aux limites 1.6 et 1.7 deviennent :

– aux parois solides, en $r = A$ et $z = 0$:

$$\begin{cases} \mathbf{u} = \mathbf{0} \\ \frac{\partial \Theta}{\partial \mathbf{n}} = 0, \end{cases} \quad (1.16)$$

avec $A = R/e$ le facteur de forme de la cavité.

– En surface libre, $z = 1$:

$$\begin{cases} \frac{\partial u}{\partial z} = -Ma \frac{\partial \Theta}{\partial r} \\ \frac{\partial v}{\partial z} = -Ma \frac{1}{r} \frac{\partial \Theta}{\partial \phi} \\ w = 0 \\ \frac{\partial \Theta}{\partial z} = -Bi (\Theta + 1) \end{cases} \quad (1.17)$$

avec Ma et Bi les nombre de Marangoni et Biot.

$$Ma = \frac{-\gamma e \Delta T_s}{\mu \alpha} \quad \text{et} \quad Bi = \frac{H_{th} e}{\kappa}$$

La contrainte capillaire en surface libre est comprise dans le nombre de Marangoni. Dans la condition sur la température réduite, le membre de droite (qui fait apparaître le nombre de Biot) tient compte à la fois de l'échange convectif avec la phase gazeuse et du flux d'évaporation.

Au final l'écoulement est piloté par le quadruplet de paramètres adimensionnels : $\mathcal{Q} = (Bi, Pr, Ma, Ra)$ qui dépendent eux même des deux paramètres de contrôle utilisés dans l'expérience : l'épaisseur initiale e (constante), et la viscosité dynamique μ de la solution.

On utilisera ces paramètres physiques comme paramètres de notre étude. Dans le cas du PIB/Toluène, la correspondance entre ceux-ci et les nombres adimensionnels est donnée dans le tableau suivant.

Ma	Ra	Pr	Bi
5850 e/μ	451 e^3/μ	12 μ	0.2 e

Tableau 1.2 – Correspondance entre les paramètres adimensionnés et le couple épaisseur/viscosité (e en mm et μ en mPa.s et dans le cas d'une solution de PIB/Toluène).

1.2 Méthodes numériques

1.2.1 Discrétisation

La méthode utilisée ici est la même que celle utilisée par Bouizi [12]. Elle utilise des notions largement décrites dans Canuto *et al.* [15], Boyd [14] et Peyret [59].

Discrétisation temporelle

L'évolution temporelle des variables est décrite par un schéma aux différences finies d'ordre 2 semi-implicite. Les dérivées temporelles sont calculées avec un schéma implicite d'ordre 2 alors que les termes d'advection sont calculés avec un schéma d'Adams-Bashforth. Les termes de diffusion sont implicites.

Pour une variable X à calculer au temps $t^{(n+1)} = (n+1)\Delta t$, connue aux deux temps précédents $t^{(n)} = n\Delta t$ et $t^{(n-1)} = (n-1)\Delta t$, la discrétisation temporelle d'ordre 2 s'écrit :

$$\left(\frac{\partial X}{\partial t}\right)^{(n+1)} = \frac{3X^{(n+1)} - 4X^{(n)} + X^{(n-1)}}{2\Delta t} + \mathcal{O}(\Delta t^2), \quad (1.18)$$

où $X^{(n)} \equiv X(t^{(n)})$. Le schéma d'Adams-Bashforth s'écrit :

$$[X]^{(n+1)} = 2X^{(n)} - X^{(n-1)} + \mathcal{O}(\Delta t^2) \quad (1.19)$$

Ainsi, la résolution de l'équation d'advection-diffusion d'une variable X :

$$\frac{\partial X}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) X = \Delta X \quad (1.20)$$

sera ramené à la résolution d'un problème de Helmholtz :

$$\left(\Delta - \frac{3}{2\Delta t}\right) X^{(n+1)} = \frac{-4X^{(n)} + X^{(n-1)}}{2\Delta t} + [(\mathbf{u} \cdot \nabla) X]^{(n+1)} \quad (1.21)$$

L'opérateur de Helmholtz $(\Delta - \frac{3}{2\Delta t})$ est inversé en tenant compte des conditions aux limites.

Discrétisation spatiale

Les solutions (\mathbf{u}, Θ) du système 1.15 sont projetées sur une base orthogonale de polynômes de Chebyshev de degrés N_r et N_z dans les directions \mathbf{e}_r et \mathbf{e}_z . Elles sont décomposées en séries de Fourier dans la direction azimuthale \mathbf{e}_ϕ . Ainsi chaque variable X du problème s'écrit :

$$X(r, \phi, z, t) = X_0^c(r, z, t) + \sum_{m=1}^{N_\phi} X_m^c(r, z, t) \cos(m\phi) + \sum_{m=1}^{N_\phi} X_m^s(r, z, t) \sin(m\phi), \quad (1.22)$$

où N_ϕ est l'ordre de troncature spectral de la série de Fourier. Le problème initial tri-dimensionnel se décompose donc en $2N_\phi + 1$ sous problèmes bi-dimensionnels qui seront couplés, dans les cas de la résolution des équations de Navier-Stokes et de l'énergie, par le calcul du terme non linéaire.

La projection dans le plan méridien bi-dimensionnel se fait selon une méthode de collocation pseudo-spectrale. Les points de collocation sont les points de Gauss-Radau dans la direction radiale et les points de Gauss-Lobatto dans la direction axiale. Les points de Gauss-Radau, qui pourront être légèrement modifiés comme on le verra par la suite, initialement répartis sur l'intervalle $] - 1, 1]$, sont ramenés sur l'intervalle $]0, A]$. L'axe n'est pas inclus ce qui permet de ne pas avoir à traiter la singularité qui s'y trouve. Les points de Gauss-Lobatto, initialement répartis sur l'intervalle $[-1, 1]$, sont ramenés sur l'intervalle $[0, 1]$.

La résolution des équations de Navier-Stokes et de l'énergie avec leurs conditions aux limites se ramène à celle de problèmes de Helmholtz. Pour chaque mode azimutal m , l'inconnu $X_m^{(n+1)}$ est résolue sur $(N_r - 1) \times (N_z - 2)$ points intérieurs du domaine, puis les points aux frontières sont calculés de manière à respecter les conditions aux limites (Nguyen et Delcarte [51]). L'inversion de l'opérateur consiste non pas à inverser une matrice de dimension $((N_r - 1) \times (N_z - 2))^2$ mais à passer dans l'espace propre de l'opérateur, d'y résoudre le problème, et à revenir dans l'espace réel. Cette procédure est inefficace en une dimension, mais s'avère d'une efficacité optimale en deux dimensions sur une grille orthogonale. Cela permet de résoudre le problème par diagonalisations successives (Haldenwang *et al.* [32]) dans chacune des directions sans avoir à inverser l'opérateur total de manière explicite. Cela nécessite le stockage de quatre matrices de passage : deux matrices dans chaque direction, de tailles respectives $(N_r - 1) \times (N_r - 1)$ et $(N_z - 2) \times (N_z - 2)$, ce qui est bien plus petit que la taille de l'opérateur total.

En supposant que la solution du système est suffisamment régulière, la projection de la solution dans l'espace de dimension finie converge exponentiellement avec le nombre de points de collocation vers la solution exacte du système.

Le domaine bi-dimensionnel sur lequel les variables de l'écoulement sont définies pour chaque mode Fourier est désigné par $\overline{\mathcal{D}}$

$$\overline{\mathcal{D}} =]0, A] \times [0, 1] \quad (1.23)$$

Le domaine intérieur \mathcal{D} et les frontières $\partial\mathcal{D}$ sont définis par :

$$\mathcal{D} =]0, A[\times]0, 1[\quad \text{et} \quad \partial\mathcal{D} = \overline{\mathcal{D}} \setminus \mathcal{D} \quad (1.24)$$

\mathcal{D}_r et \mathcal{D}_z sont les sous domaines dans les directions radiale et axiale, définis par :

$$\mathcal{D}_r =]0, A[\times [0, 1] \quad \text{et} \quad \mathcal{D}_z =]0, A] \times]0, 1[. \quad (1.25)$$

1.2.2 Découplage vitesse-pression

La résolution de la pression est assurée par un algorithme de projection-diffusion [4, 3]. La méthode est indépendante du schéma temporel. Dans le domaine \mathcal{D} de normale extérieure \mathbf{n} et pour chaque mode Fourier m :

1. on détermine le champ de pression p solution du système :

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathbf{u}^* + \nabla p = \mathbf{f} \\ \nabla \cdot \mathbf{u}^* = 0 \\ \nabla p \cdot \mathbf{n} = (-\text{Pr} \nabla \times \nabla \times \mathbf{u} + \mathbf{f}) \cdot \mathbf{n} \text{ sur } \partial \mathcal{D} \end{array} \right. \quad \text{dans } \left\{ \begin{array}{l} \mathcal{D}_r \text{ pour la composante radiale} \\ \mathcal{D}_z \text{ pour la composante axiale} \\ \overline{\mathcal{D}} \end{array} \right.$$

2. on détermine le champ de vitesse \mathbf{u} solution de :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} - \text{Pr} \Delta \mathbf{u} = \mathbf{u}^* \\ + \text{C.L. sur } \partial \mathcal{D} \end{array} \right. \quad \text{dans } \mathcal{D}$$

Les opérations numériques mettant en œuvre la méthode de projection-diffusion apportent une erreur sur la divergence qui doit décroître exponentiellement avec le nombre de mailles dans le cas où la solution est suffisamment régulière [4, 43].

1.2.3 Méthode de résolution du système

Nous allons maintenant procéder à l'écriture des différents opérateurs à inverser. Avec $\mathbf{u} = u \mathbf{e}_r + v \mathbf{e}_\phi + w \mathbf{e}_z$, les équations Navier-Stokes et de l'énergie s'écrivent en coordonnées cylindriques :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial u}{\partial r} + \frac{u}{r} + \frac{1}{r} \frac{\partial v}{\partial \phi} + \frac{\partial w}{\partial z} = 0 \end{array} \right. \quad (1.26a)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial u}{\partial t} + \mathbf{NL} \cdot \mathbf{e}_r = -\frac{\partial p}{\partial r} + \text{Pr} \left(\Delta u - \frac{2}{r^2} \frac{\partial v}{\partial \phi} - \frac{u}{r^2} \right) + \mathbf{f}_{ext} \cdot \mathbf{e}_r \end{array} \right. \quad (1.26b)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial v}{\partial t} + \mathbf{NL} \cdot \mathbf{e}_\phi = -\frac{1}{r} \frac{\partial p}{\partial \phi} + \text{Pr} \left(\Delta v - \frac{2}{r^2} \frac{\partial u}{\partial \phi} - \frac{v}{r^2} \right) + \mathbf{f}_{ext} \cdot \mathbf{e}_\phi \end{array} \right. \quad (1.26c)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial w}{\partial t} + \mathbf{NL} \cdot \mathbf{e}_z = -\frac{\partial p}{\partial z} + \text{Pr} \Delta w + \mathbf{f}_{ext} \cdot \mathbf{e}_z \end{array} \right. \quad (1.26d)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \Theta}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \Theta = \Delta \Theta \end{array} \right. \quad (1.26e)$$

avec $\mathbf{f}_{ext} = \text{RaPr} \Theta \mathbf{e}_z$ et le vecteur \mathbf{NL} qui s'écrit de la manière suivante :

$$\mathbf{NL} = \begin{pmatrix} (\mathbf{u} \cdot \nabla) u - \frac{v^2}{r} \\ (\mathbf{u} \cdot \nabla) v + \frac{uv}{r} \\ (\mathbf{u} \cdot \nabla) w \end{pmatrix} \quad (1.27)$$

En coordonnées cylindriques, le laplacien d'une variable scalaire X s'écrit :

$$\Delta X = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial X}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 X}{\partial \phi^2} + \frac{\partial^2 X}{\partial z^2} \quad (1.28)$$

Lors de la discrétisation temporelle, le terme non-linéaire sera explicité. En l'incluant dans le terme de forçage \mathbf{f} pour plus de clarté, ces équations peuvent s'écrire sous la forme :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial u}{\partial r} + \frac{u}{r} + \frac{1}{r} \frac{\partial v}{\partial \phi} + \frac{\partial w}{\partial z} = 0 \end{array} \right. \quad (1.29a)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \left(\left(\Delta - \frac{1}{r^2} \right) - \frac{1}{\text{Pr}} \frac{\partial}{\partial t} \right) u = \frac{1}{\text{Pr}} \frac{\partial p}{\partial r} + \frac{2}{r^2} \frac{\partial v}{\partial \phi} + \mathbf{f} \cdot \mathbf{e}_r \end{array} \right. \quad (1.29b)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \left(\left(\Delta - \frac{1}{r^2} \right) - \frac{1}{\text{Pr}} \frac{\partial}{\partial t} \right) v = \frac{1}{\text{Pr}} \frac{1}{r} \frac{\partial p}{\partial \phi} + \frac{2}{r^2} \frac{\partial u}{\partial \phi} + \mathbf{f} \cdot \mathbf{e}_\phi \end{array} \right. \quad (1.29c)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \left(\Delta - \frac{1}{\text{Pr}} \frac{\partial}{\partial t} \right) w = \frac{1}{\text{Pr}} \frac{\partial p}{\partial z} + \mathbf{f} \cdot \mathbf{e}_z \end{array} \right. \quad (1.29d)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \left(\Delta - \frac{\partial}{\partial t} \right) \Theta = f_\Theta \end{array} \right. \quad (1.29e)$$

avec $\mathbf{f} = -\mathbf{NL} + \text{RaPr} \Theta \mathbf{e}_z$ et $f_\Theta = -(\mathbf{u} \cdot \nabla) \Theta$.

Les opérateurs comprenant les termes de dérivations temporelles et agissant sur les inconnues du système amèneront à des opérateurs de type Helmholtz une fois la discrétisation temporelle effectuée.

L'équation sur la température réduite est résolue en premier. La vitesse et la pression sont ensuite découplées avec la méthode de projection-diffusion, le détail de cette procédure peut être consulté en annexe A.1. Reste à calculer le champ de vitesse, dont le couplage avec le champ de température intervient à la fois dans la poussée d'Archimède et l'effet Marangoni en surface libre. Un dessin schématique de l'algorithme de résolution est représenté en figure 1.2. L'expression des différentes variables sous la forme de séries de Fourier ainsi que le détail des calculs se trouvent en annexe A.2.

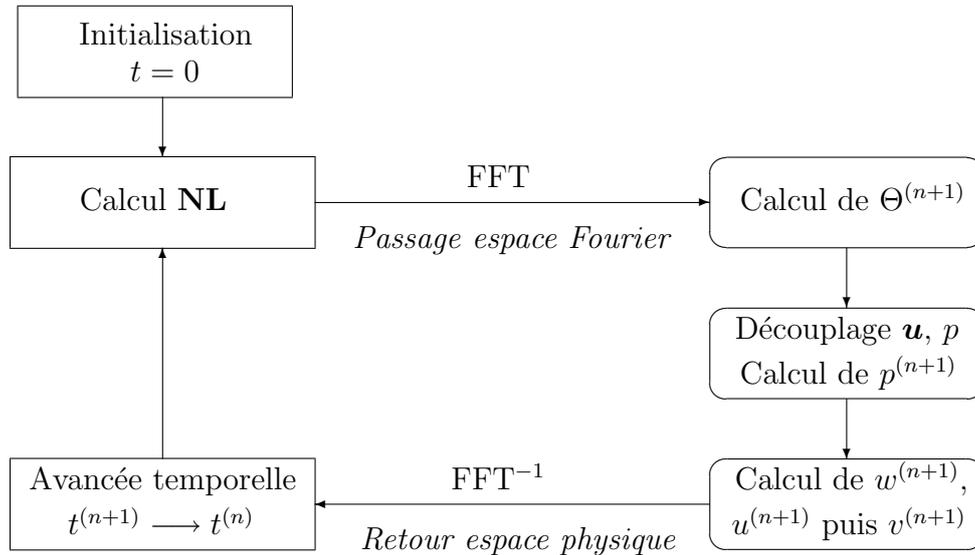


Figure 1.2 – Schéma de l'algorithme utilisé.

Quatre opérateurs de type Helmholtz, $\mathcal{OP}_i, i = 1, \dots, 4$ (voir annexe A.2), dans lesquels sont appliquées les conditions aux limites, sont à inverser dans l'espace spectral Fourier

pour chaque mode azimutal m . Une fois ces opérations effectuées, on repasse dans l'espace physique avec une transformation de Fourier inverse pour effectuer l'avancée temporelle ainsi que le calcul du terme non linéaire **NL** du pas de temps suivant.

1.2.4 Problème lié à l'inversion du laplacien réduit

Le contenu de ce paragraphe a donné lieu à un article paru dans *Journal of Computational Physics* et qui a été mis en annexe B de ce manuscrit.

La résolution des problèmes de Helmholtz définis précédemment se fait par une méthode de diagonalisations successives (Successive Diagonalization Technique) [44, 32]. Elle nécessite de passer dans l'espace propre de l'opérateur dans chaque direction puis d'y résoudre le problème.

La SDT est particulièrement attractive, notamment par son efficacité et sa facilité d'implémentation, à condition que l'ellipticité du problème continu soit conservée au niveau discret. On peut noter que c'est le cas la plupart du temps en coordonnées cartésiennes, c'est-à-dire pour l'opérateur $\frac{\partial^2}{\partial z^2}$ et ce, quelle que soit la condition limite imposée en $z = \pm 1$. En coordonnées cylindriques, l'implémentation de la SDT dépend de l'ellipticité du compagnon de $\frac{\partial^2}{\partial z^2}$, à savoir l'opérateur polaire

$$\left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right) - \frac{m^2}{r^2} \right), \quad (1.30)$$

m étant le nombre d'onde azimutal. On retrouve cet opérateur polaire dans l'opérateur \mathcal{OP}_1 défini précédemment. L'ellipticité de l'opérateur polaire, qui se traduit par un spectre de valeurs propres réelles négatives, est inconditionnellement préservée lorsqu'on passe à sa version discrète Chebyshev Gauss-Radau avec une condition limite de type Dirichlet imposée en $r = 1$. Dès lors qu'une condition limite de type Neumann est fixée, des couples de valeurs propres complexes conjuguées peuvent apparaître pour différentes valeurs de m dès que la fréquence de coupure radiale N_r vérifie $N_r > 12$. Dans cette section, on montre que la présence de ces valeurs propres complexes conjuguées, qui violent l'ellipticité de l'opérateur polaire continu, est authentique et non la conséquence d'amplification des erreurs d'arrondis associées au mauvais conditionnement des opérateurs de différentiation. Dans le cadre de l'utilisation de cette grille dans une configuration physique, l'analyse est limitée par $N_r \leq 200$ et $m \leq 500$.

Regardons dans un premier temps les valeurs propres ξ_n de l'opérateur polaire discret lorsque $m = 4$. L'indice " n " représente le numéro de la valeur propre. La figure 1.3 présente le spectre des valeurs propres obtenu avec des conditions aux limites de type Dirichlet et Neumann, Cela pour plusieurs valeurs de N_r . Les valeurs propres sont triées par ordre croissant, elles sont toutes réelles et négatives. On voit que la majeure partie d'entre elles converge vers le spectre analytique (zone analytique), représenté par l'enveloppe commune à toutes les courbes. Lorsqu'on s'écarte de cette enveloppe, les valeurs propres sont d'origines numériques (zone numérique).

Intéressons nous maintenant au spectre de l'opérateur polaire discret pour $N_r = 128$ et $m = 11$, présenté en figure 1.4. Avec une condition limite de type Neumann, il fait apparaître $(N_r - 2)$ valeurs propres réelles négatives ainsi qu'une paire de valeurs propres complexes conjuguées qui se situe à la fin de la zone analytique. La partie imaginaire

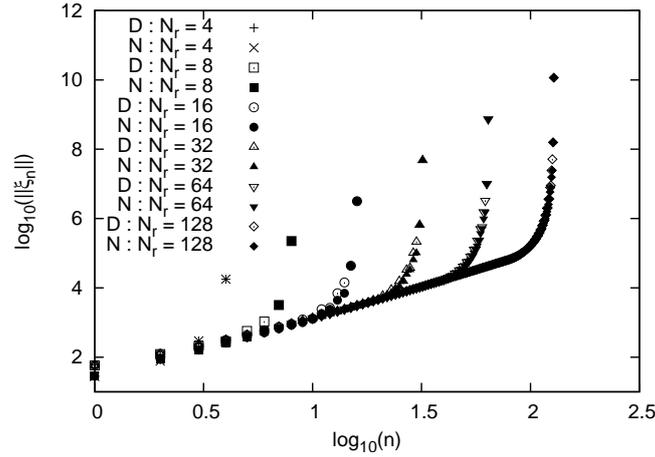


Figure 1.3 – $\log_{10}(\|\xi_n\|)$ en fonction de $\log_{10}(n)$, pour des conditions aux limites de type Dirichlet (D) et Neumann (N), différentes valeurs de N_r et $m = 4$.

(hexagone hors de la courbes) est petite mais incompatible avec le zéro machine. Avec une condition de type Dirichlet, toutes les valeurs propres restent réelles et négatives.

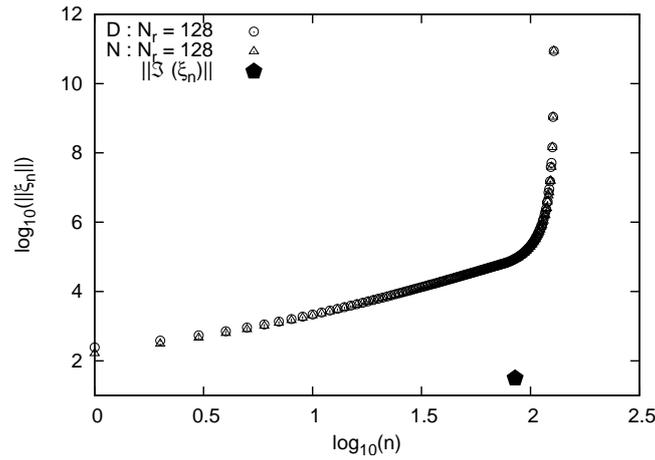


Figure 1.4 – $\log_{10}(\|\Re(\xi_n)\|)$ et $\log_{10}(\|\Im(\xi_n)\|)$ (lorsque $\|\Im(\xi_n)\| \neq 0$) en fonction de $\log_{10}(n)$, pour des conditions aux limites de type Dirichlet (D) et Neumann (N), $N_r = 128$ et $m = 11$.

Nous avons recherché les $m(N_r)$ pour lesquels l'opérateur polaire présente des valeurs propres complexes lorsqu'il est associé à une condition aux limites de type Neumann. La figure 1.5 présente, en fonction de N_r , la première valeur de m pour laquelle des valeurs propres complexes apparaissent. Nous observons que le choix de m et donc de N_ϕ est très limité et n'est pas proportionnel à la variation de N_r . On notera que l'évolution du premier m conduisant avec des valeurs propres complexes conjuguées n'est pas continue. L'opérateur polaire retrouve sa propriété d'ellipticité pour $N_r = 15, 16, 17$.

Origines de ces valeurs propres complexes

La question est de savoir si ces valeurs propres complexes sont des artefacts numériques et/ou si elles sont dues au mauvais conditionnement de l'opérateur polaire discret. La réponse peut être donnée à l'aide de deux tests numériques réalisés avec $m = 39$. Comme indiqué sur la figure 1.5, des valeurs propres complexes apparaissent par exemple pour

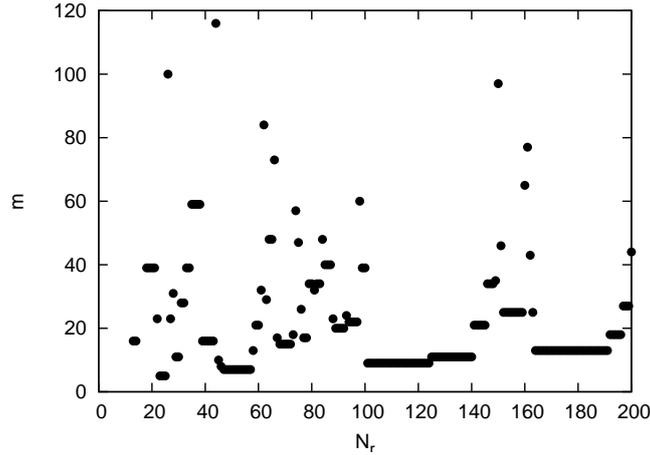


Figure 1.5 – Les m donnant la première valeur propre complexe de l'opérateur polaire discret.

$N_r = 18, 19, 20, 21$. Dans un premier temps on calcule ces valeurs propres avec $N_r = 20$ en augmentant autant que possible le nombre de chiffres significatifs. Cette opération est réalisée avec le logiciel Mathematica et il en résulte que les valeurs propres complexes ne sont pas dues aux erreurs d'arrondis. Elles convergent vers des valeurs de plus en plus précises, par exemple avec 6 chiffres significatifs : $-11879.8 \pm 17.3509i$. Si maintenant, on recalcule les valeurs propres pour $N_r = 22$ on obtient un spectre purement réel malgré le fait que la matrice soit moins bien conditionnée que dans le cas $N_r = 20$ (voir par exemple [59]). On peut donc en conclure que les valeurs propres complexes sont des valeurs propres authentiques du problème discret.

La présence de valeurs propres complexes n'empêche en rien l'utilisation de la SDT. Le prix à payer pouvant être un codage plus complexe et/ou une augmentation du temps de calcul. Néanmoins, il est intéressant d'utiliser cette configuration pour regarder la sensibilité de l'ellipticité lorsque les points de collocation sont légèrement modifiés. Ce travail est l'objet de la section suivante.

Sensibilité de l'ellipticité à la grille de calcul

Les points de Gauss (Gauss-Radau et Gauss-Lobatto) sont connus pour donner la meilleure interpolation polynomiale dans un domaine fini. Est-ce que ces points préservent l'ellipticité de l'opérateur continu au niveau discret ? La réponse est positive dans la plupart des cas mais on vient ici de trouver un contre exemple. Dans le cas de l'utilisation de la méthode de projection-diffusion, l'opérateur de Stokes, analysé dans [43], présente quelques couples de valeurs complexes conjuguées lorsqu'une condition de Dirichlet est imposée sur la vitesse.

Il est intéressant de voir si l'ellipticité peut être retrouvée en changeant légèrement la grille de calcul.

Dans cette optique nous avons choisi d'utiliser un mapping proposé dans [41] par Kosloff et Tal-Ezer. Leur but est de réduire, de $\mathcal{O}(N^{-2})$ à $\mathcal{O}(N^{-1})$ le critère sur le pas de temps lors de la résolution de problèmes hyperboliques 1D discrétisés sur une grille de Gauss-Lobatto. L'application de ce mapping change les points de Gauss-Radau d'abscisses

r_i en nouveaux points d'abscisses x_i grâce à la relation :

$$x_i = g(r_i; \alpha) = \frac{\arcsin(\alpha r_i)}{\arcsin(\alpha)} \in]-1, 1] \text{ pour } i = 0, \dots, N_r \text{ avec } 0 \leq \alpha < 1. \quad (1.31)$$

Pour des valeurs de α proches de 0, les points originaux de Gauss-Radau sont très légèrement décalés tandis que lorsque α tend vers 1, ces points sont répartis uniformément sur l'intervalle $] -1, 1]$. Dans la suite le cas $\alpha = 0$ correspond aux points de Gauss-Radau non altérés. Pour $N_r = 60$, la figure 1.6 montre la disposition des x_i (ramenés à $]0, 1]$) en fonction de $i = 0, \dots, N_r$ et pour différents α .

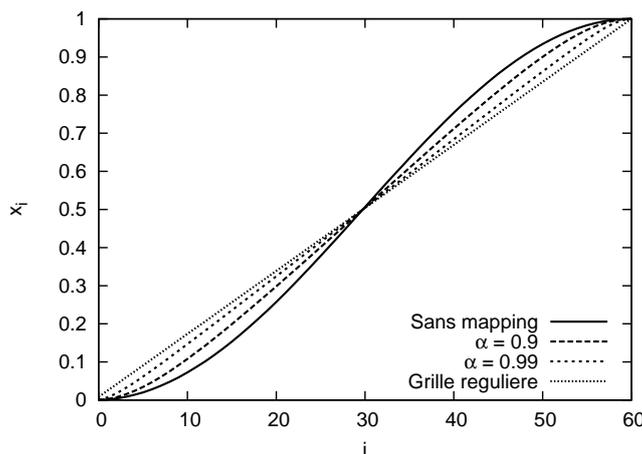


Figure 1.6 – Disposition des x_i en fonction de $i = 0, \dots, N_r$ et pour différents α . $N_r = 60$.

Ce mapping a été l'objet de nombreuses études [41, 34, 1, 14, 47]. Les analyses portent notamment sur le choix adéquat du paramètre α en fonction de la précision souhaitée, de la résolution spatiale ou encore de la stabilité de la méthode. Ici, le but est différent, on cherche à repousser en N_r et m l'apparition de valeurs propres complexes sans perdre la précision spectrale de manière significative. En accord avec les analyses sur le paramètre du mapping [34, 14], $\alpha = 0.9$ est dans un premier temps choisi. Cette valeur n'est pas trop loin de $\alpha = \cos(1/2) \simeq 0.87$ proposée dans [14] et pour des valeurs de N_r comprises entre 30 et 160. Une comparaison avec $\alpha = 0.99$ est aussi réalisée.

Opérateurs de dérivation

Les points de collocations étant modifiés, il faut également écrire les nouveaux opérateurs de dérivations. Toute fonction $f(r)$ est transformée en $h(x)$ dont la dérivée première s'écrit :

$$\frac{dh}{dx} = \frac{1}{g'(r; \alpha)} \frac{df}{dr} \quad \text{avec} \quad g'(r; \alpha) = \frac{\partial g}{\partial r} \quad (1.32)$$

La dérivée discrète première dans la direction radiale \mathbf{D} devient :

$$\mathbf{D} \rightarrow \mathbf{A} \cdot \mathbf{D} \quad (1.33)$$

où \mathbf{A} est une matrice diagonale dont les termes sont donnés par :

$$\mathbf{A}_{ii} = \frac{1}{g'(r_i; \alpha)} = \frac{\alpha}{\arcsin(\alpha) \sqrt{1 - (\alpha r_i)^2}}, \quad i = 0, \dots, N_r \quad (1.34)$$

De la même façon, la matrice \mathbf{D}^2 qui représente la dérivée seconde discrète $\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right)$ est modifiée :

$$\mathbf{D}^2 \rightarrow \mathbf{A}^2 \cdot \mathbf{D}^2 + \mathbf{B} \cdot \mathbf{D}, \quad (1.35)$$

avec \mathbf{B} la matrice diagonale définie par

$$\mathbf{B}_{ii} = -\frac{g''(r_i; \alpha)}{(g'(\alpha; r_i))^3}, \quad i = 0, \dots, N_r \quad (1.36)$$

avec

$$g''(r_i; \alpha) = \frac{\alpha^3}{\arcsin(\alpha)} \frac{r_i}{(1 - (\alpha r_i)^2)^{3/2}} \quad (1.37)$$

Impact sur le spectre de l'opérateur polaire de diffusion

La figure 1.7 présente la façon dont est décalée la première valeur de m conduisant à des valeurs propres complexes pour $\alpha = 0.9$ et $\alpha = 0.99$. Des valeurs propres complexes sont toujours obtenues mais pour des valeurs N_r ($N_r \geq 29$ pour $\alpha = 0.9$ et $N_r \geq 81$ pour $\alpha = 0.99$) et m plus élevées.

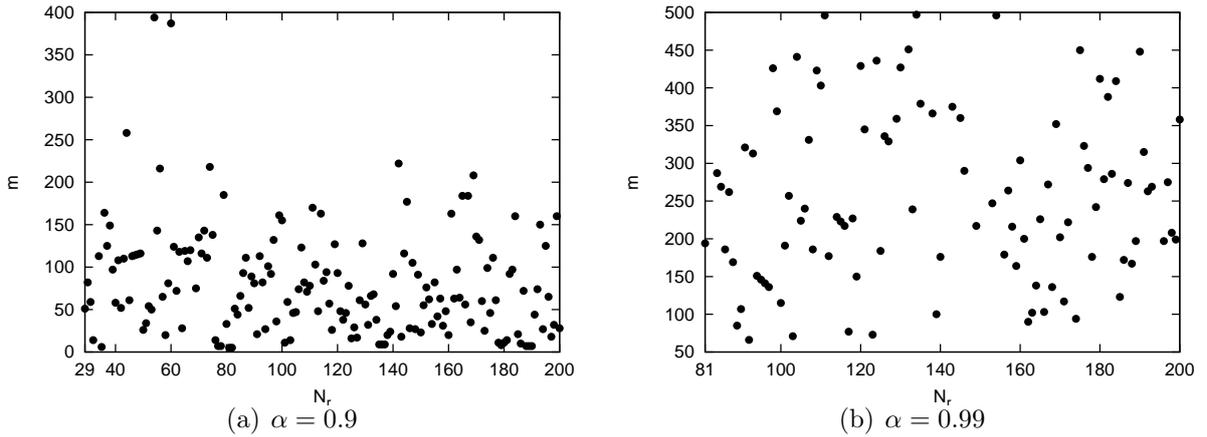


Figure 1.7 – Les m donnant les premières valeurs propres complexes conjuguées de l'opérateur polaire discret.

Le fait de changer les points de collocation permet d'obtenir des spectres purement réels alors qu'ils étaient auparavant « pollués » par des valeurs propres complexes. Cependant, pour ces valeurs du paramètre de mapping, l'ellipticité de l'opérateur polaire discret n'est pas « totalement » retrouvée. On peut noter que $\alpha = 0.999$ permet de retrouver (dans ce cas : $N_r \leq 200$ et $m \leq 500$) intégralement l'ellipticité de l'opérateur. Néanmoins, pour des raisons non comprises ici, $\alpha = 0.999$ n'est pas applicable dans notre configuration physique.

Regardons maintenant comment ce mapping joue sur le spectre de l'opérateur de diffusion polaire discret. On note $\xi^{(\alpha)}$ le jeu des valeurs propres obtenues avec un mapping de paramètre α et on le compare avec les valeurs propres ξ obtenues sans mapping. On choisit $N_r = 128$ et $m = 4$ avec une condition limite de type Neumann. La différence relative $\left| \frac{\xi_n^{(\alpha)} - \xi_n}{\xi_n} \right|$ est donnée en figure 1.8. Deux régions se démarquent. L'une est la partie

du spectre dans laquelle les valeurs propres numériques sont en bon accord avec les valeurs analytiques (zone analytique de la figure 1.3). Le mapping a un effet significatif sur la précision des valeurs propres mais l'impact d'un point de vue pratique est sans importance. L'autre région, où la différence est significative, correspond à la zone numérique précédemment évoquée.

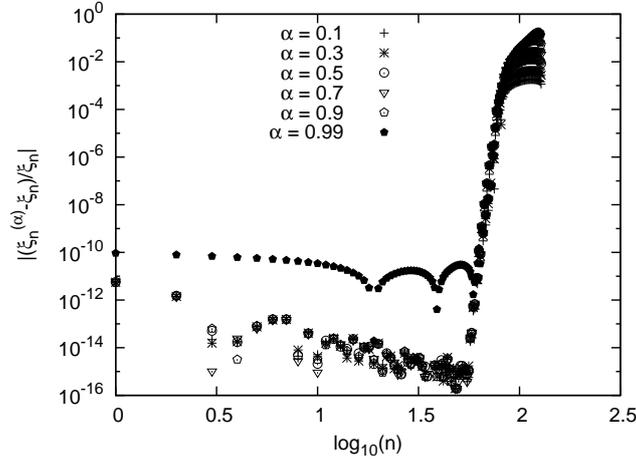


Figure 1.8 – Différence relative $\left| \frac{\xi_n^{(\alpha)} - \xi_n}{\xi_n} \right|$ des différents spectres, dans le cas Neumann et avec $N_r = 128$, $m = 4$ pour différentes valeurs de α .

Les conséquences pratiques de ce comportement sont les suivantes : on s'attend à ce que la plus grande valeur propre (en valeur absolue) obtenue avec une grille de points de Gauss-Radau varie asymptotiquement avec N_r , en $\mathcal{O}(N_r^4)$. C'est cette variation qui permet aux méthodes spectrales utilisant des polynômes de Chebyshev de capturer les couches limites de l'écoulement près des parois solides. La figure 1.9 présente les lois d'échelle avec et sans mapping. Comme attendu lorsque l'on tend vers une grille régulière, c'est-à-dire pour des valeurs de α qui tendent vers 1, on obtient un comportement des valeurs propres maximales variant en $\mathcal{O}(N_r^2)$. Des différences sont donc attendues, notamment lors du calcul numérique d'écoulements quand les hautes fréquences jouent un rôle important.

Comparaison avec une solution analytique

Le fait de changer les points de collocation de Gauss-Radau (ou Gauss-Lobatto) pose le problème de la précision. En effet, il est bien connu [15] que ces points sont utilisés pour avoir la meilleure précision possible d'un point de vue théorique. On s'attend donc à ce que le mapping dégrade la précision spectrale du schéma Chebyshev Gauss-Radau, et ce d'autant plus que l'on fait tendre α vers 1.

On propose de regarder l'impact du mapping sur la précision. On considère l'équation :

$$\left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right) - \frac{m^2}{r^2} \right) u = f(r), \quad r \in]0, 1[, \quad (1.38)$$

dans laquelle le terme source est choisi comme $f(r) = (N_r^2 - m^2) r^{N_r}$. La solution analytique est le polynôme $u(r) = r^{N_r}$ qui coïncide exactement (numériquement cela se traduit par le zéro machine) avec la solution numérique de l'équation 1.38 résolue par

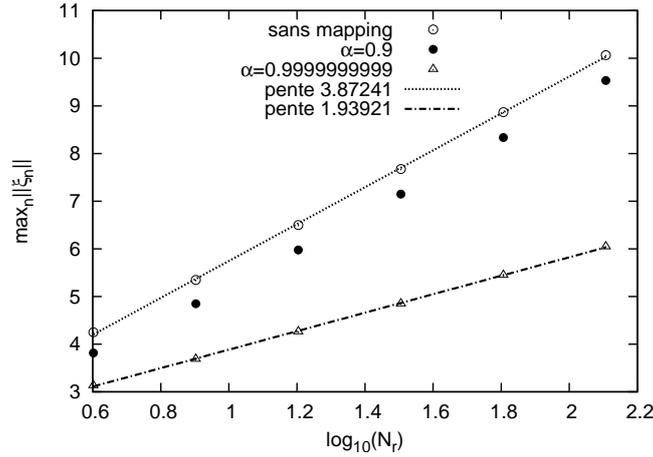


Figure 1.9 – Lois d'échelles en $\mathcal{O}(N^\beta)$ des valeurs propres maximales, dans une cas Neumann, sans mapping et avec pour une valeurs de $\alpha = 0.9999999999999999$. Elles suggèrent des lois asymptotiques $\max_n |\xi_n| \simeq \mathcal{O}(N_r^4)$ et $\max_n |\xi_n^{(\alpha)}| \simeq \mathcal{O}(N_r^2)$ si $\alpha \rightarrow 1$.

une discrétisation Chebyshev Gauss-Radau. A cette équation est associée une condition à la limite de type Neumann en $r = 1$: $\left. \frac{\partial u}{\partial r} \right| = N$. Il est très facile de comparer l'erreur commise par rapport à la solution analytique d'un solveur de l'équation 1.38 utilisant un paramètre de mapping α . On note $u^{(N)}(r_i)$ avec $i = 1, \dots, N_r$ les valeurs nodales obtenues avec le solveur « mappé », et

$$E = \max_{i=1, \dots, N_r} \left| \frac{u^{(N_r)}(r_i) - r_i^{N_r}}{r_i^N} \right|, \quad (1.39)$$

l'erreur relative en norme max entre la solution analytique et la solution numérique calculée. La figure 1.10(a) présente l'erreur E en fonction du paramètre de mapping α pour plusieurs valeurs de N_r . Pour des α petits ou des N_r élevées, l'erreur est très faible. La figure 1.10(b) présente pour ce même test la décroissance de l'erreur en fonction de la fréquence de coupure N_r . On constate que pour des valeurs de α petites, la convergence du solveur mappé vers la solution exacte est rapide. La vitesse de convergence se dégrade avec l'augmentation de α , c'est-à-dire lorsqu'on tend vers une grille régulière. Nous observons également que les erreurs d'arrondi commises lors de la résolution sont moins amplifiées que dans le cas où l'on n'utilise pas de mapping. Ceci a été observé par d'autres auteurs [61, 1].

Conclusion

Il ressort de cette étude que la version discrète Chebyshev Gauss-Radau de l'opérateur de diffusion polaire auquel est associé une condition à la limite de type Neumann en $r = 1$, ne préserve pas l'ellipticité du problème continu. Des valeurs propres complexes conjuguées sont susceptibles d'apparaître pour certaines valeurs du couple (m, N_r) . Ces valeurs propres sont des valeurs authentiques du problème discret et ne viennent en aucun cas d'erreurs d'arrondi ou d'artefacts numériques. Une légère modification des points de Gauss-Radau, qui préserve le raffinement en $\mathcal{O}(N_r^{-4})$, est adoptée et permet de repousser en m et N_r l'apparition de ces valeurs propres complexes. Cela met en évidence que

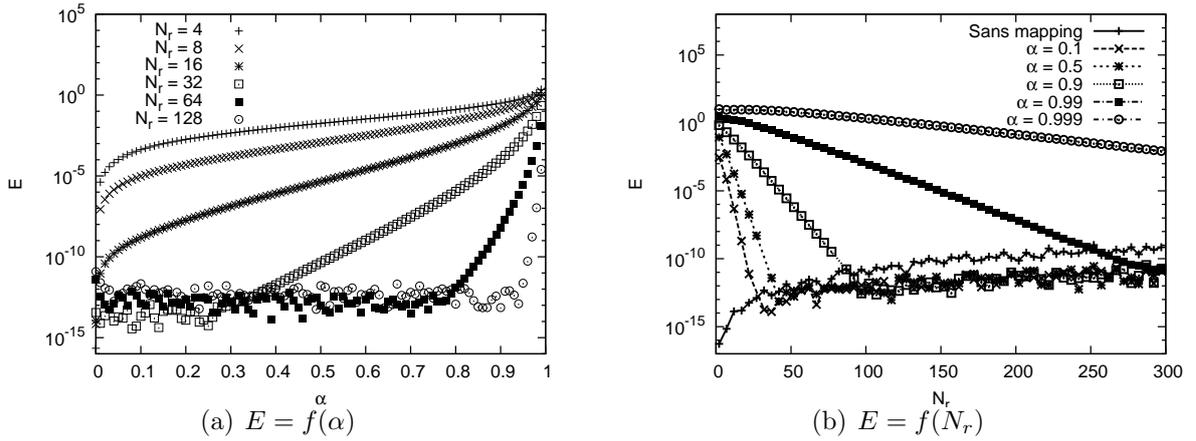


Figure 1.10 – Erreur relative maximum E , $m = 4$.

l'ellipticité du problème discret est sensible à la grille de collocation utilisée. La comparaison avec une solution analytique montre que la précision spectrale se dégrade quand la grille tend vers une grille régulière. Malgré cela, nous montrerons plus loin (section 1.2.5), que sur un cas physique, les erreurs numériques entre les solutions obtenues avec et sans utilisation du mapping sont relativement faibles. L'erreur maximale est observée dans les zones où les gradients sont les plus forts. Ceci coïncide avec l'effet du mapping sur le spectre de l'opérateur polaire dont la différence par rapport à l'opérateur original est maximale pour les hautes fréquences.

1.2.5 Validations

Le code de calcul utilisé a été validé une première fois dans une configuration de zone flottante [12]. Deux autres configurations physiques plus proches de notre étude ont également servi à valider le code.

Cas Rayleigh-Bénard cylindrique

La première configuration test est un écoulement de type Rayleigh-Bénard cylindrique. Ce cas a été largement étudié par Boronska et Tuckerman [10, 11] pour une gamme de facteurs de forme allant de 0.5 à 3.

La cavité cylindrique est fermée et un gradient de température vertical est imposé en fixant la température des parois horizontales (en $z = 0$ et $z = 1$). La paroi verticale ($r = A$) est supposée adiabatique. Les équations font apparaître deux nombres adimensionnels : le nombre de Prandtl Pr (fixé, $Pr = 1$) et le nombre de Rayleigh. On utilise une grille de calcul non mappée définie par $(N_r \times N_\phi \times N_z) = (40 \times 16 \times 19)$ et le pas de temps est $\Delta t = 10^{-4}$.

La figure 1.11 présente les résultats de l'étude de stabilité linéaire menée par Boronska et Tuckermann [10], à savoir le nombre de Rayleigh critique Ra_c nécessaire pour déstabiliser l'état conductif ainsi que le mode azimutal m dominant. Par exemple pour un facteur de forme $A = 1.5$ le Rayleigh critique est d'environ 1900 et le mode $m = 0$ est dominant.

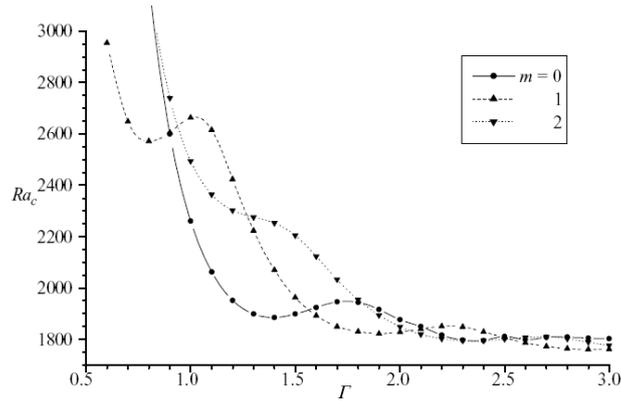


Figure 1.11 – Courbe de stabilité de l'état conductif [10, 11] : nombre de Rayleigh critique (Ra_c) en fonction du facteur de forme ($A = \Gamma$).

Nous testerons trois configurations. Les paramètres utilisés ainsi que le mode azimutal dominant sont répertoriés dans le tableau 1.3. Comme dans [10], on s'intéresse au champ de température à mi-hauteur, une fois l'état stationnaire atteint.

A	Ra	Mode azimutal m dominant
1.5	1900	0
1.8	1850	1
2.1	1850	2

Tableau 1.3 – Cas tests effectués en configuration Rayleigh-Bénard cylindrique et mode azimutal dominant (dédits de la figure 1.11).

La figure 1.12 montre les champs de température à mi-hauteur pour les trois configurations définies. Les bons motifs instables sont obtenus.

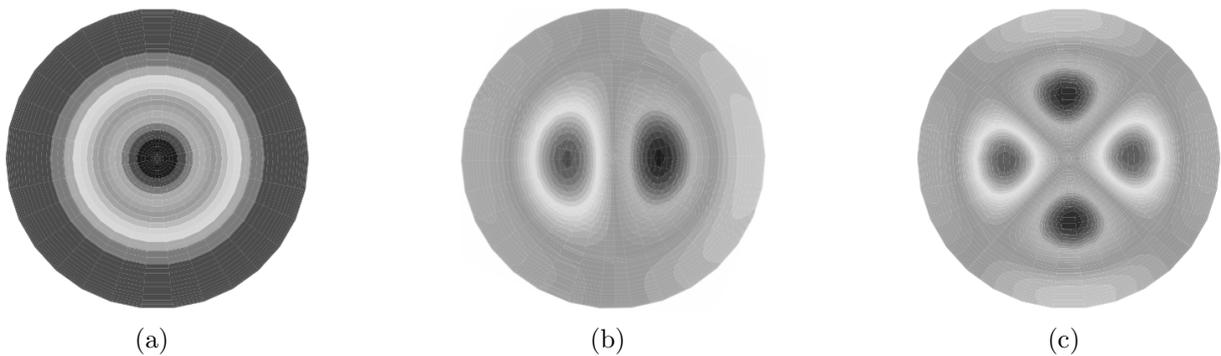


Figure 1.12 – Motifs obtenus dans différentes configurations. Comparaison avec l'analyse de stabilité linéaire. Champ de température à mi-hauteur, $Pr = 1$. (a) $A = 1.5$, $Ra = 1900$. (b) $A = 1.8$, $Ra = 1850$. (c) $A = 2.1$, $Ra = 1850$.

Configuration Rayleigh-Bénard-Marangoni cylindrique

Le second cas est une configuration avec surface libre. Les parois solides de la cavité sont adiabatiques et le fluide est refroidi au niveau de la surface libre par l'air ambiant.

L'écoulement dépend des nombres de Marangoni et Rayleigh, le nombre de Prandtl est fixé à 890. La grille de calcul est non mappée, définie par $(N_r \times N_\phi \times N_z) = (160 \times 49 \times 19)$ et le pas de temps est $\Delta t = 5 \times 10^{-4}$.

Les résultats du code sont comparés avec ceux des travaux numériques de Médale et Cerisier [48] ainsi qu'avec le cas expérimental de référence dû à Koschmieder et Prahl [40]. Dans la configuration expérimentale, le motif avec trois cellules est obtenu pour plusieurs facteurs de forme et différentes valeurs des nombres de Rayleigh et Marangoni. Le tableau 1.4 récapitule les différents paramètres utilisés par les auteurs. Dans ces configurations, les champs de température relevés en surface libre sont présentés en figure 1.13

Auteurs	cas n°	A	Ma	Ra
Koschmieder et Prahl [40] Expérimental	1	2.16	330	396
	2	2.665	81	65
	3	3.295 2.82	76.5 109	40 352
Médale et Cerisier [48] Numérique	1	2.16	330	396
	2	2.665	93	65
	3	3.29	88	40
Ce travail Numérique	1	2.16	330	396
	2	2.665	97	68
	3	2.82	109	352

Tableau 1.4 – Tableau récapitulatif des différents paramètres utilisés dans la configuration RBM.

Le motifs axi-symétrique est retrouvé pour les bons paramètres (expérimentaux et numériques). Pour retrouver la symétrie du cas 2, on se place légèrement au-dessus des paramètres numériques ce qui pourrait expliquer la légère différence entre les deux visualisations. Le cas 3 est obtenu avec les paramètres expérimentaux.

Précision et mapping

Il est intéressant d'évaluer l'impact du mapping sur la précision dans un cas pratique. On considère l'écoulement axi-symétrique de zone flottante en microgravité. Cet écoulement à été étudié en détails dans [19, 17, 12]. Un pont liquide cylindrique, de hauteur $2H$ et de rayon R , est maintenu par capillarité entre deux disques solides isothermes horizontaux. Sa surface libre latérale est soumise à un chauffage parabolique stationnaire. Dans cette configuration, un écoulement thermocapillaire peut se développer dans le liquide : les variations de tension superficielle dues au gradient thermique en surface libre génèrent une contrainte tangentielle. Cet écoulement est généralement étudié dans l'espace des paramètres Prandtl (Pr) Marangoni (Ma). Les champs axi-symétriques de vitesse et de température ont largement été étudiés pour une large gamme de paramètres [19, 17, 12]. Le traitement numérique de la singularité du champ de vorticit  qui apparaît au niveau du point triple a été étudié en détails dans [37, 18]. Les équations régissant ce système font apparaître les mêmes opérateurs que dans ce travail et se trouvent en annexe B (annexe de l'article).

On note w_{ij} les coordonnées de la vitesse axiale aux points de maillage. La grille est constituée de points de Gauss-Radau dans la direction radiale, et de points de Gauss-

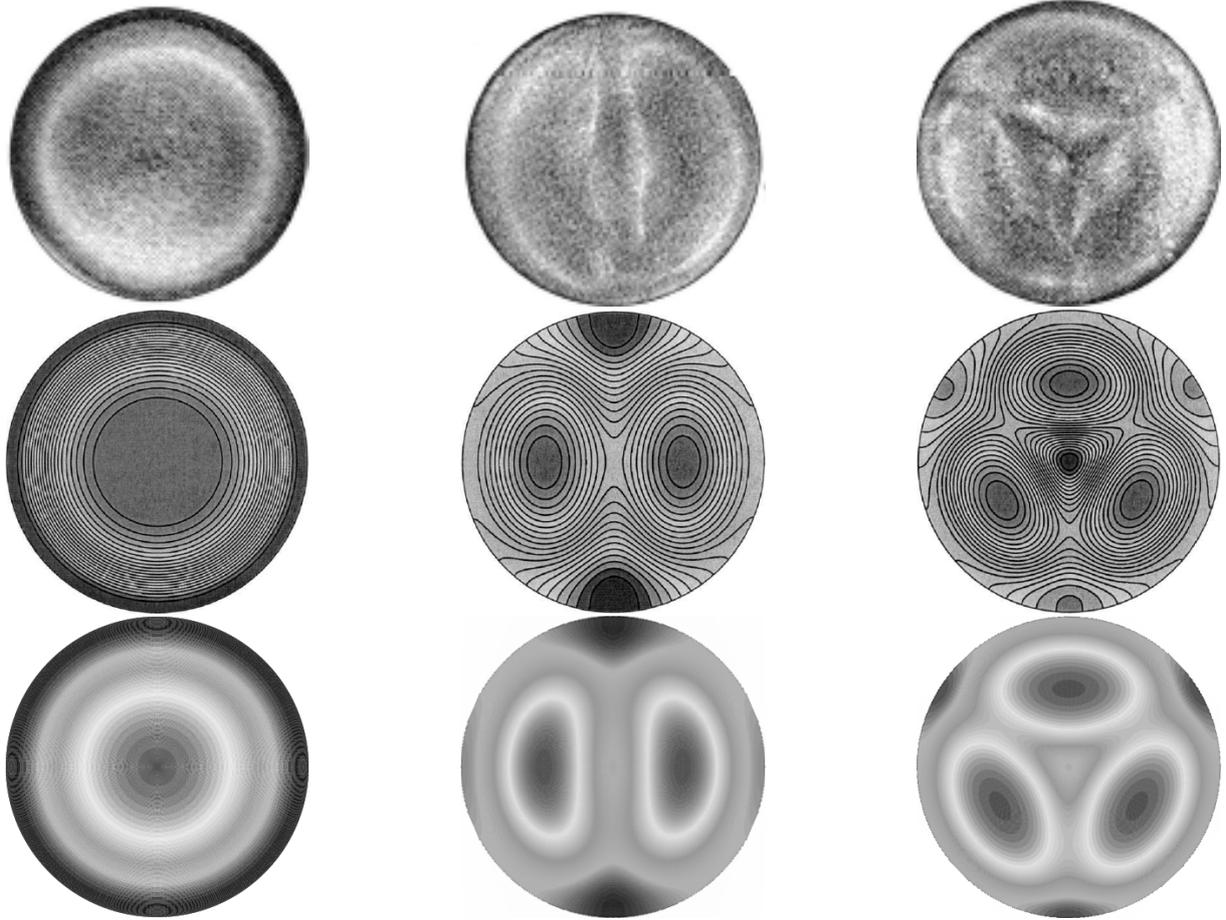


Figure 1.13 – Champs de température en surface libre. De gauche à droite, cas 1, 2 et 3. De haut en bas : Configuration expérimentale (Koschmieder et Prahl [40]), simulation numérique (Médale et Cerisier [48]) et notre simulation numérique.

Lobatto dans la direction axiale. La vitesse axiale aux points décalés par le mapping dans la direction radiale et notée w_{ij}^{map} . En chaque point l'erreur relative E_{ij} , commise en utilisant un mapping par rapport à la solution sans mapping est donnée par :

$$E_{ij} = \frac{|w_{ij}^{map} - w_{ij}|}{\max_{i,j} |w_{ij}^{map}|}. \quad (1.40)$$

La figure 1.14 présente deux grandeurs : les iso-lignes de vitesse axiale sont représentées par les traits pleins tandis que la plage de couleur représente l'erreur relative E aux noeuds du maillage. L'échelle montre la valeur de l'erreur qui reste de l'ordre de 10^{-7} . On souligne que pour un paramètre de mapping $\alpha = 0.99$, cette erreur est amplifiée de trois décades. L'erreur entre les résultats classiques et ceux utilisant le mapping n'est pas très importante et la transformation peut être utilisée pour conserver l'ellipticité des opérateurs. Les calculs sont effectués sur une grille $(N_r \times N_\phi \times N_z) = (69 \times 1 \times 99)$ et $\Delta t = 10^{-3}$.

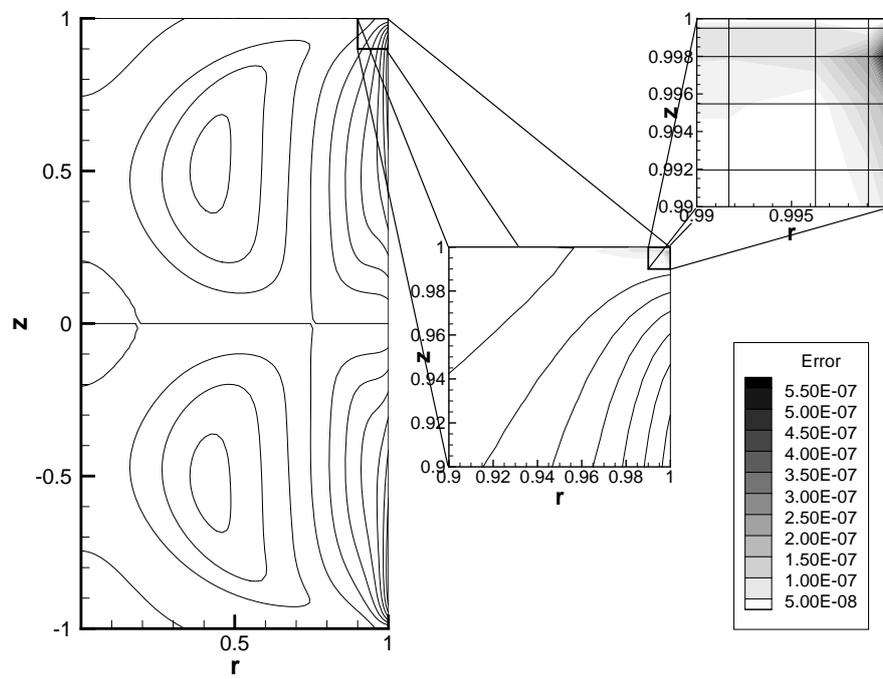


Figure 1.14 – Iso lignes de vitesse axiale (traits pleins) et erreur relative E_{ij} (contours), pour $\alpha = 0.9$. (Ma = 106 et Pr = 10^{-2}).

Chapitre 2

Convection transitoire 3D d'origine thermique

Ce chapitre présente les résultats obtenus pour une convection transitoire de type Rayleigh-Bénard-Marangoni. L'étude des conditions initiales sur les seuils de transition ainsi que sur la structure de l'écoulement a donné lieu à un article en cours d'acceptation dans *European Physical Journal - Special Topics*, et qui peut être consulté en annexe B.

2.1 Outils

On introduit dans cette section les principaux outils utilisés dans la suite de l'étude.

Moyenne et écart type

Pour une variable X , la moyenne sera notée \bar{X} . On associe à la moyenne un écart type (ou dispersion standard) noté σ_X . On rappelle que pour N échantillons,

$$\bar{X} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N X_i \quad \text{et} \quad \sigma_X = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (X_i - \bar{X})^2}. \quad (2.1)$$

Le coefficient de variation $CV(X)$ est défini par $CV(X) = \sigma_X / \bar{X}$.

2.1.1 Décomposition de Voronoï

Afin d'étudier les structures d'écoulement, une décomposition de Voronoï sera utilisée. Cette décomposition, aussi connue sous le nom de construction de Wigner-Steitz a déjà été utilisée par Eckert *et al.* [28] dans le but de caractériser des motifs convectifs.

Pour un ensemble de points $E = \{p_1, p_2, \dots, p_n\}$, cette décomposition consiste en un découpage de l'espace en cellules polygonales 2D. Chaque cellule, notée $V(p_i)$, est associée à un point p_i et est construite de façon à ce que tous les points appartenant à $V(p_i)$ soient plus proches de p_i que de tout autre point.

La définition est la suivante : soit $E = \{p_1, p_2, \dots, p_n\}$ un ensemble de points de \mathbb{R}^d , une cellule $V(p_i)$, $i = 1, \dots, n$, dite de Voronoï, est définie pour chaque point :

$$V(p_i) = \{x : d(x, p_i) \leq d(x, p_j), \forall j\}. \quad (2.2)$$

avec $d(x, p_i)$ la distance entre les points x et p_i . Un exemple d'application est présenté en figure 2.1.

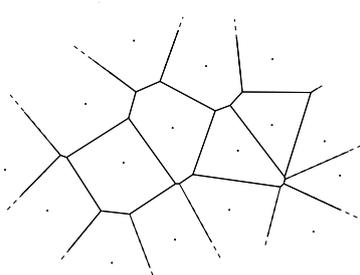


Figure 2.1 – Exemple de construction d'un maillage de Voronoï dans un cas général. Dans notre cas les points pourraient représenter les différents centres des cellules de convection.

2.1.2 Méthodologie et recherche de seuils de transition diffusion-convection

Bilan des méthodes existantes

La détermination de seuils de transition est un point important. La particularité du problème traité est qu'il est en régime transitoire ; il ne possède pas d'état de base établi. Les seuls états stationnaires dont nous disposons sont l'état initial homogène ($\Theta = 0$) et l'état final stable et homogène ($\Theta = -1$). Au cours du temps, un écart de température $\Delta\Theta$ se développe dans l'épaisseur et des instabilités peuvent déstabiliser l'état diffusif. Les méthodes de stabilité classiques ne sont donc pas appropriées à ce genre de problème. On peut citer deux approches portant sur l'étude de problèmes ayant un état de base dépendant du temps : La méthode de « temps-figé » (*Frozen-Time assumption*, notée FT) et la méthode d'amplification (*Amplification theory*, notée AT).

La méthode FT consiste à ramener le problème considéré à un problème autonome. Elle s'appuie sur l'hypothèse selon laquelle l'état de base évolue bien plus lentement que les perturbations. Cette hypothèse peut ne pas être vérifiée notamment lorsque l'on se place au voisinage du seuil de transition.

La méthode AT, introduite par Foster [29], se base sur la résolution du problème linéaire non-autonome entier. Elle nécessite l'identification de conditions initiales représentatives du problème.

Dans [26], Doumenc *et al.* proposent une méthode adaptée à l'étude de problèmes transitoires et l'appliquent à cette configuration physique (convection de type Rayleigh-Bénard-Marangoni due à l'évaporation). Cette méthode, dite de stabilité linéaire par modes non normaux (Linear Non-normal Stability Analysis), s'appuie sur la méthode d'amplification dans laquelle les perturbations initiales sont obtenues par une méthode d'optimisation. Nous en rappelons brièvement la démarche. Le problème 3D (en couche infinie, dans le repère $(0, x, y, z)$) est ramené à un problème 2D en supposant qu'il n'y a pas de direction privilégiée de développement d'instabilité. Les perturbations (notées « $\tilde{\sim}$ ») autour de l'état initial s'écrivent :

$$(\mathbf{u}, \Theta, p) = (\mathbf{u}_0, \Theta_0, p_0) + (\tilde{\mathbf{u}}(z, t), \tilde{\Theta}(z, t), \tilde{p}(z, t)) \exp(ikx) \quad (2.3)$$

avec k le nombre d'onde dans la direction x . Deux gains sont définis. Le premier $G_v(t)$ est basé sur l'énergie cinétique des perturbations de vitesse et le deuxième, $G_T(t)$, est un terme quadratique basé sur la perturbation de température. Pour chaque nombre d'onde k et chaque temps t , un problème d'optimisation est résolu pour trouver le profil en z de la perturbation initiale optimale, c'est-à-dire celle qui maximise $G_v(t, k)$ ou $G_T(t, k)$. On définit ensuite $G_v^* = \max_{t,k} G_v(t, k)$ et $G_T^* = \max_{t,k} G_T(t, k)$. G_v et G_T étant normalisés par la valeur initiale de l'énergie cinétique et de la norme de la température, $G^* < 1$ signifie que la perturbation initiale n'est jamais amplifiée. Dans cette méthode, on se fixe a priori un seuil G_c tel que la convection sera considérée significative si $G^* \geq G_c$. Dans les courbes reportées pour des comparaisons dans ce manuscrit, on utilisera comme critère $G_T^* = G_v^* = 1$.

Ces différentes méthodes se basent sur une linéarisation des variables. Elles ne donnent donc pas d'informations sur les champs (vitesse et température), hormis le nombre d'onde dominant. Pour le problème 2D non-linéaire (du problème RBM considéré ici), une autre approche, combinant simulations non-linéaire et le choix d'un critère pour définir l'état convectif, à été appliquée par Touazi *et al.* [64]. C'est cette approche qui sera utilisée dans la suite et étendue au cas 3D.

Critère définissant l'état convectif

On choisit de se fixer un critère sur la vitesse de l'écoulement pour caractériser la présence d'un état convectif. Le nombre de Péclet, qui compare les transferts convectifs aux transferts diffusifs est utilisé. Il est défini de la manière suivante :

$$\text{Pe} = \frac{\mathcal{U}e}{\alpha}, \quad (2.4)$$

avec \mathcal{U} la vitesse caractéristique de l'écoulement. Si ce nombre de Péclet est supérieur à l'unité, la convection sera considérée comme significative. Dans cette partie, la vitesse \mathcal{U} choisie est la norme maximum de la vitesse. Ainsi après passage en variables sans dimension, l'écriture du nombre de Péclet se ramène à :

$$\text{Pe} = \max\|\mathbf{u}\| \quad (2.5)$$

Concrètement, lors de la recherche de seuils de transition, les calculs sont initialisés avec une perturbation imposée issue d'un tirage aléatoire (cf. section 2.2). L'évolution temporelle du nombre de Péclet est alors observée. La transition diffusif-convectif se traduit par le passage de

$$\text{Pe}(t) < 1 \quad \forall t \quad \text{à} \quad \exists t_c \quad \text{tel que} \quad \text{Pe}(t_c) > 1. \quad (2.6)$$

On note le temps de transition t_c .

Pour les problèmes transitoires, il n'est pas possible de définir un seuil unique entre les états stables et instables. Le choix du critère et l'amplitude ou la forme des perturbations initiales vont en effet conditionner le résultat. Il est plus exact de parler d'une zone de transition entre les domaines stables et instables. Il est donc important de vérifier que cette zone est « fine », i.e. que différents critères ou amplitudes des perturbations conduisent à des seuils proches comparés aux domaines balayés par les paramètres d'étude.

Encadrement

Les paramètres régissant le problème dépendent de l'épaisseur e et de la viscosité μ . La recherche de seuils se ramène à trouver, pour une épaisseur donnée, la valeur de la viscosité de transition, μ_c , caractérisant le passage d'un état diffusif à un état convectif. Pour chaque épaisseur on effectue donc une dichotomie sur la viscosité afin d'encadrer la viscosité critique pour laquelle on passe de l'état diffusif à l'état convectif. La viscosité critique est encadrée entre une valeur max, μ_{max} , et une valeur min, μ_{min} . μ_{max} correspond à la viscosité pour laquelle l'état de la solution reste diffusif ($Pe < 1$) et μ_{min} est la viscosité pour laquelle l'état est convectif ($Pe > 1$). La viscosité de transition est alors estimée comme appartenant à $[\mu_{min}, \mu_{max}]$. On s'arrange, lors de l'encadrement des seuils pour que $\frac{\mu_{max}-\mu_{min}}{\mu_{max}}$ n'excède pas 5%.

Remarque : Dans la suite, par abus de langage, on utilisera parfois le terme de « critique » pour parler de la valeur de transition.

2.2 Exemples de convection transitoire

Afin d'illustrer le caractère transitoire de l'écoulement, on se propose d'observer en détails deux cas définis par les épaisseurs extrêmes de la configuration expérimentale : 1 mm et 30 mm.

Pour les faibles épaisseurs, on s'attend à observer des écoulements dominés par l'effet Marangoni tandis la poussée d'Archimède domine pour des épaisseurs plus importantes [65, 64]. Le facteur de forme de la cavité est choisi égal à 10 ; l'influence du confinement sera discutée dans la suite.

Lors des simulations numériques¹, le nombre de modes dans le plan méridien est $(N_r \times N_z) = (180 \times 19)$ et la discrétisation azimutale se fait avec $N_\phi = 128$ modes de Fourier. Le pas de temps est constant, fixé à $\Delta t = 10^{-3}$. Nous avons montré dans le chapitre 1.2 que les fréquences de coupures $N_r = 180$ et $N_\phi = 128$ conduisent à une perte de l'ellipticité de l'opérateur de diffusion polaire discret, et que cette propriété de l'opérateur peut être retrouvée à l'aide d'une transformation du maillage radial. Un mapping des points de collocation dans la direction radiale est donc adopté avec le paramètre $\alpha = 0.99$.

Un premier test, en configuration de zone flottante, a été présenté dans le chapitre 1.2. Nous avons observé que, avec $\alpha = 0.99$, l'erreur relative commise sur le champ de vitesse axiale était de l'ordre de 10^{-4} dans les zones de forts gradients.

Dans notre configuration le facteur limitant est le facteur de forme et donc les fréquences de coupure N_r et N_ϕ . Une évaluation du mapping est faite en choisissant un facteur de forme égal à 5, ce qui permet d'utiliser des points de collocations originaux. Pour les fréquences de coupures $(N_r \times N_\phi \times N_z) = (150 \times 95 \times 19)$ on regarde la différence entre les solutions obtenues sans mapping ($\alpha = 0$) et avec mapping ($\alpha = 0.99$). Cette opération est faite pour différentes épaisseurs et viscosités. L'erreur relative commise sur les champs de vitesse est au maximum de l'ordre de 10^{-5} et elle est toujours située dans les zones de forts gradients. La conservation de la précision spectrale n'étant pas la priorité dans ce travail, on utilise dans la suite les fréquences de coupures $(N_r \times N_\phi \times N_z) = (180 \times 128 \times 19)$ avec le paramètre de mapping $\alpha = 0.99$. Nous insistons sur le fait que, dans cette configuration

¹mono-processeur sur dual core de type P575 cadencés à 1.9 GHz

physique, et après une vérification systématique des résultats, l'utilisation du mapping des points de Gauss-Radau est un bon compromis pour échapper à une implémentation en variables complexes des différents opérateurs.

Pour ces deux exemples, les simulations numériques sont initialisées avec un champ de température homogène auquel est superposée une perturbation issue d'un tirage aléatoire et d'amplitude $a = 10^{-3}$:

$$\Theta(r, \phi, z, t = 0) = \Theta_0 + \text{Rand}(r, \phi, z) \quad (2.7)$$

avec Θ_0 la température initiale non perturbée ($\Theta_0 = 0$) et $\text{Rand}(r, \phi, z)$ une valeur aléatoire choisie selon une loi uniforme dans l'intervalle $[-a/2, a/2]$. (Les choix de la forme de la condition initiale ainsi que de l'amplitude seront discutés dans les sections suivantes.)

2.2.1 Faibles épaisseurs, convection due à l'effet Marangoni

L'épaisseur et la viscosité utilisées ici sont respectivement de 1 mm et $\mu = 3$ mPa.s ce qui correspond à $\text{Ma} = 1950$ et $\text{Ra} = 150$. Les nombres de Prandtl et de Biot sont $\text{Pr} = 36$ et $\text{Bi} = 0.2$.

Diffusion pure

Intéressons nous dans un premier temps au cas diffusif : $\text{Ma} = \text{Ra} = 0$, ce qui se traduit par un champ de vitesse nul $\mathbf{u} = \mathbf{0}$. Le refroidissement du liquide au niveau de la surface libre génère une différence de température sur l'épaisseur. La figure 2.2 présente l'évolution des maxima et minima de température adimensionnée qui correspondent aux températures relevées au fond de la cavité et en surface libre. La transition entre l'état initial, où $\Theta = 0$, et l'état final pour lequel $\Theta = -1$ se fait sur un temps adimensionné de l'ordre de 30. Un écart de température, noté $\Delta\Theta_{\max} = |\max \Theta - \min \Theta|$, est alors généré dans l'épaisseur de la couche fluide. La figure 2.3 présente l'évolution temporelle de $\Delta\Theta_{\max}$

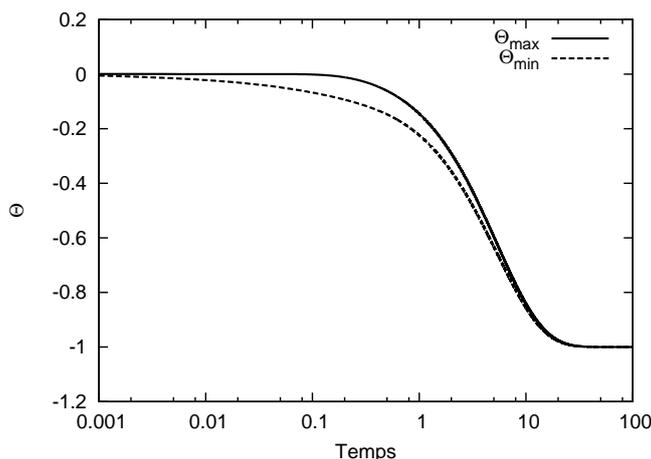


Figure 2.2 – Evolution des extréma de température adimensionnée dans le cas diffusif. ($e = 1$ mm, contraintes nulles : $\text{Ra} = 0$ et $\text{Ma} = 0$.)

en échelle logarithmique. Initialement égal à 0, il évolue jusqu'à un maximum, de l'ordre de 10^{-1} puis décroît et redevient nul. Ces courbes, présentant le cas purement diffusif, seront utilisées par la suite pour discuter du choix du critère définissant l'état convectif.

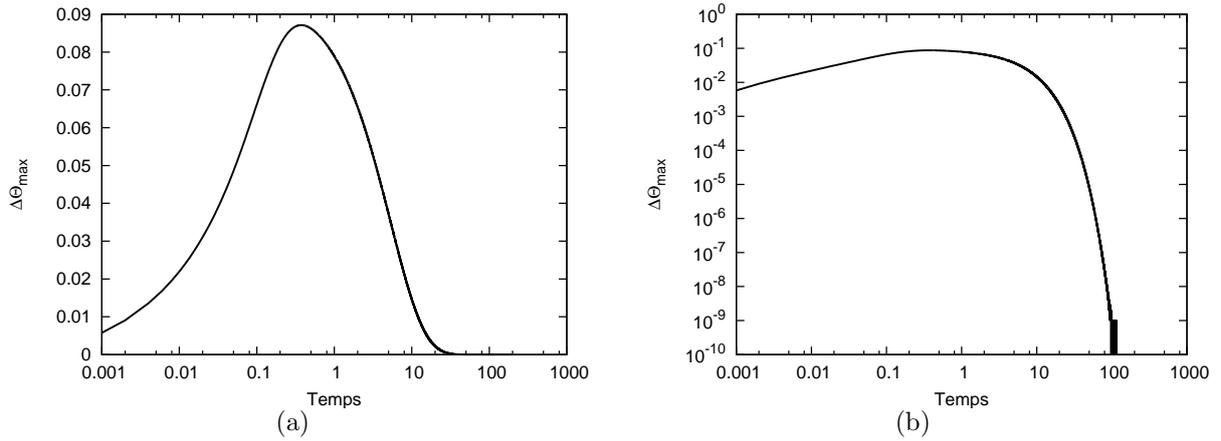


Figure 2.3 – (a) Evolution temporelle de $\Delta\Theta_{\max}$ (échelle logarithmique en temps). (b) échelle logarithmique en temps et en amplitude. ($e = 1$ mm.)

Remarque sur le temps nécessaire à l'obtention de l'état homogène final

On peut remarquer que numériquement, l'écart maximal de température $\Delta\Theta_{\max}$ tend vers le zéro machine pour des temps relativement longs ($t > 100$). En grandeurs dimensionnées, ΔT_{\max} est donné par la relation :

$$\Delta T_{\max} = T_{\max} - T_{\min} = \Delta\Theta_{\max} \Delta T_s \quad (2.8)$$

Lors de l'évaporation de solutions à température ambiante et en se limitant à quatre chiffres significatifs, la température du liquide est homogène dès lors que $\Delta\Theta_{\max} < 2 \times 10^{-3}$, ce qui correspond pour un épaisseur de 1 mm à un temps $t \sim 20$ (200 secondes). Avec ce critère, le temps d'obtention de l'état final homogène, noté t_h , est présenté en figure 2.4 pour plusieurs valeurs de l'épaisseur. On peut voir que ce temps varie en \sqrt{e} . Pour une épaisseur de 1 mm il faut approximativement 200 secondes pour obtenir l'état final homogène. A l'extrême, pour $e = 30$ mm, plusieurs heures sont nécessaires.

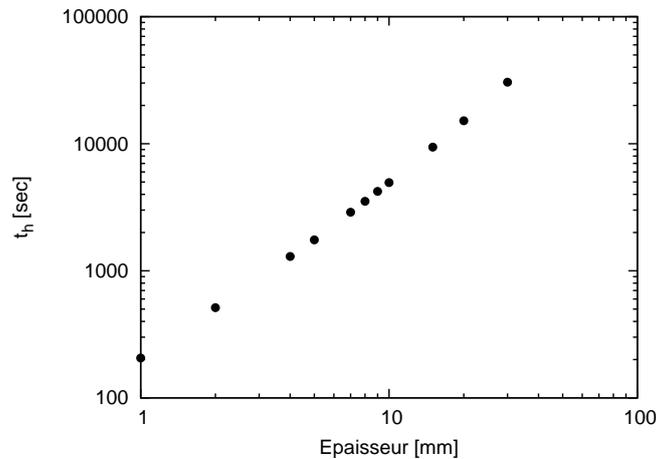


Figure 2.4 – Temps d'obtention de l'état final homogène t_h (température dimensionnée homogène avec quatre chiffres significatifs) en fonction de l'épaisseur (en millimètres).

Convection

Regardons maintenant le développement du régime convectif. La figure 2.5(a) présente, pour différents temps, les iso-contours de vitesse axiale dans un plan de coupe vertical arbitraire passant par l'axe de la cavité. On observe des cellules de convection situées près de la surface libre, caractéristiques d'un écoulement convectif dominé par l'effet Marangoni.

La figure 2.5(b) présente l'évolution du nombre de Péclet ($Pe = \max \|\mathbf{u}\|$) jusqu'à un temps $t < 3$. L'état convectif est défini par $Pe(t) > 1$. Ici, le temps de transition entre l'état diffusif et l'état convectif est $t_c \simeq 0.3$. Le nombre de Péclet augmente ensuite jusqu'à un maximum pour un temps voisin de 0.7. Pour des temps $t > 1$, Pe diminue lentement, on parle de régime quasi-stationnaire. Pour la viscosité choisie ($\mu = 3 \text{ mPa.s}$), le nouvel état diffusif ($Pe < 1$) est obtenu pour un temps $t \simeq 12$.

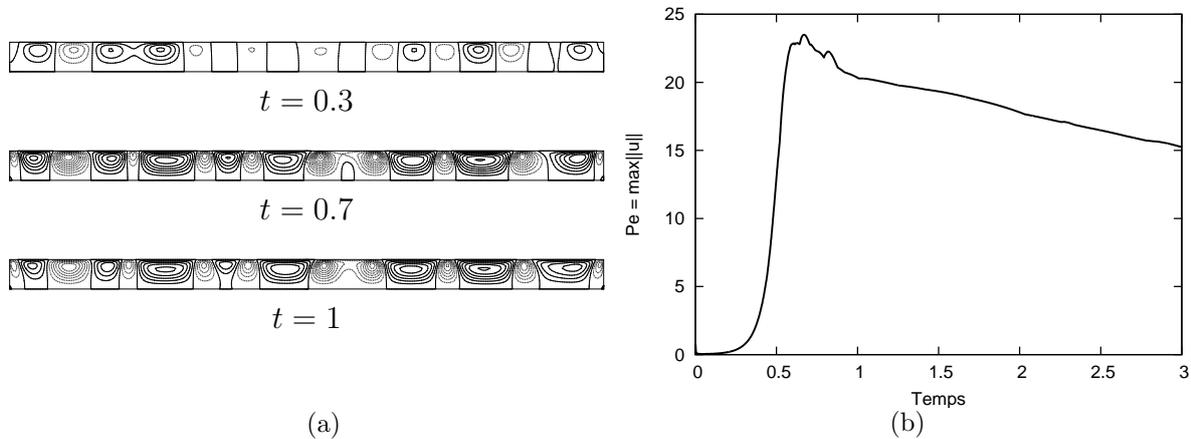


Figure 2.5 – (a) Vitesse axiale dans un plan de coupe vertical pour différents temps ; (b) Evolution temporelle de la vitesse maximale $\max \|\mathbf{u}(t)\|$. ($e = 1 \text{ mm}$, $\mu = 3 \text{ mPa.s}$, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

Dans le cadre de la démarche de recherche de seuils de transition, un aperçu de l'influence de la viscosité sur l'évolution de la vitesse est présenté en figure 2.6. Le critère définissant la convection ($Pe = 1$) est superposé aux courbes (trait plein). Pour des viscosités inférieures à 5 mPa.s , un état convectif va se développer tandis que pour des viscosités supérieures à 6 mPa.s , le critère $Pe = 1$ n'est jamais franchi. Pour cette épaisseur et pour $a = 10^{-3}$, la viscosité critique μ_c caractérisant la transition diffusif-convectif appartient à l'intervalle, $\mu_c \in [5; 6] \text{ mPa.s}$.

On s'intéresse maintenant à l'évolution du champ de température. Comme on vient de le voir l'écart maximal de température évolue au cours du temps. Pour des raisons de visualisations, le champ de température est mis à l'échelle, à chaque instant, entre -0.5 et 0.5 . La plage de couleur s'étend des températures froides (bleu) aux plus chaudes (blanc). La figure 2.7 présente l'évolution du champ de température pour des temps allant de $t = 0$ à $t = \infty$. A l'instant initial ($t = 0$), le champ de température est supposé homogène. La surface libre est refroidie, le système évolue vers un état diffusif dans lequel le champ de température est stratifié ($t \in]0, 0.33[$). Entre $t = 0.3$ et $t = 0.5$ cet état est déstabilisé

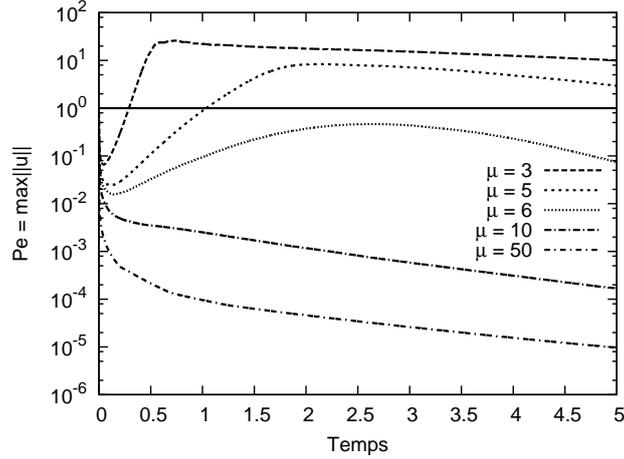


Figure 2.6 – Evolution temporelle de la vitesse maximale pour différentes viscosités $\mu \in [3; 50]$ mPa.s et, en trait plein, le critère définissant l'état convectif $Pe = 1$. ($e = 1$ mm, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

et des structures convectives désordonnées deviennent visibles au niveau de la surface libre. Pour des temps supérieurs à $t = 0.5$, on observe une organisation de ces structures convectives, ici sous forme de cellules de type Bénard-Marangoni. Leur nombre diminue au cours du temps. Le nombre maximal de cellules est relevé lorsque la convection est maximale ($t = 0.7$). Ensuite la structure de l'écoulement évolue vers l'état diffusif final pour des temps supérieurs à 13.

La figure 2.8 présente les iso-contours de températures relevés en surface libre. On observe plus nettement les structures, ici polygonales, des motifs convectifs. Une étude plus détaillée de ces structures sera développée en section 2.5.

Discussion de la pertinence du critère définissant la convection

A ce stade on peut se poser la question de la pertinence du critère de convection choisi. En se fiant à la visualisation des champs de température, l'état diffusif est déstabilisé pour un temps de transition t_c compris entre 0.3 et 0.5. Si l'on regarde l'évolution de la vitesse maximum, le critère $Pe = 1$ est atteint pour $t_c = 0.324$. L'ordre de grandeur est respecté. De même on peut regarder l'écart maximal de température $\Delta\Theta_{\max}$ et le comparer avec l'écart de température de la solution diffusive (figure 2.9(a)). Dans le cas convectif, l'évolution de $\Delta\Theta_{\max}$ s'écarte de la solution diffusive pour un temps, lui aussi, de l'ordre de 0.3. Si l'on regarde l'évolution des maxima locaux de température en surface libre (figure 2.9(b)), le temps critique de déclenchement de la convection est sensiblement le même. Le critère sur la vitesse est donc cohérent avec ces observations. Dans la suite, nous choisirons d'utiliser le nombre de Péclet pour déterminer les valeurs de transition.

Dans [54], Pasquetti *et al.* montrent que dans le cas d'une convection stationnaire de type Bénard-Marangoni et au voisinage du seuil, la déstabilisation du système peut dépendre de l'amplitude de la perturbation initiale (pour des perturbations infinitésimales). Dans notre cas d'étude, des instabilités peuvent se développer uniquement durant la plage de temps où le gradient de température dans la cavité est non nul ce qui peut amplifier l'influence des conditions initiales sur les seuils de transitions. Nous regarderons plus en détail l'influence de l'amplitude de la perturbation ainsi que de sa structure dans la section 2.3.

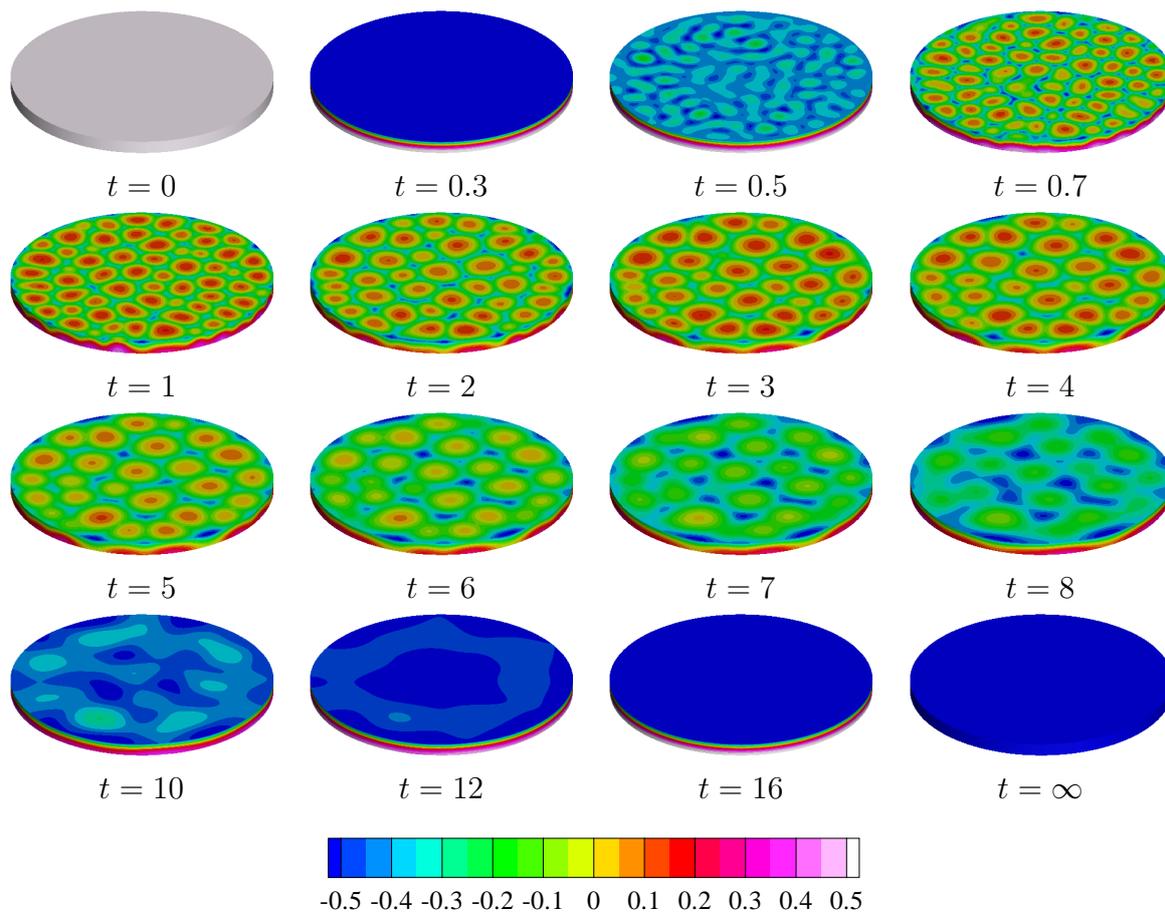


Figure 2.7 – Evolution du champ de température remis à l'échelle entre -0.5 et 0.5 au cours du temps. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

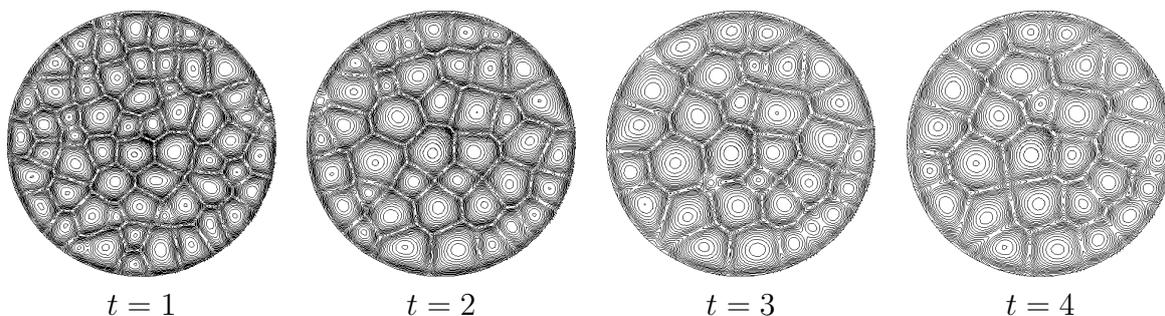


Figure 2.8 – Iso-contours de température en surface libre pour différents temps. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

On peut noter que l'écart de température maximum est plus grand que dans le cas diffusif. Lorsque la convection est active, le gradient de température $\frac{\partial \Theta}{\partial z}$ est réduit localement aux endroits où le fluide descend. Si l'on regarde la condition aux limites sur la température :

$$-\frac{\partial \Theta}{\partial z} = \text{Bi} (\Theta + 1), \quad (2.9)$$

il faut que la température diminue localement (aux endroits où le gradient est plus faible) pour équilibrer le flux d'évaporation (cf. valeurs négatives en $z = e$ sur la figure 2.10).

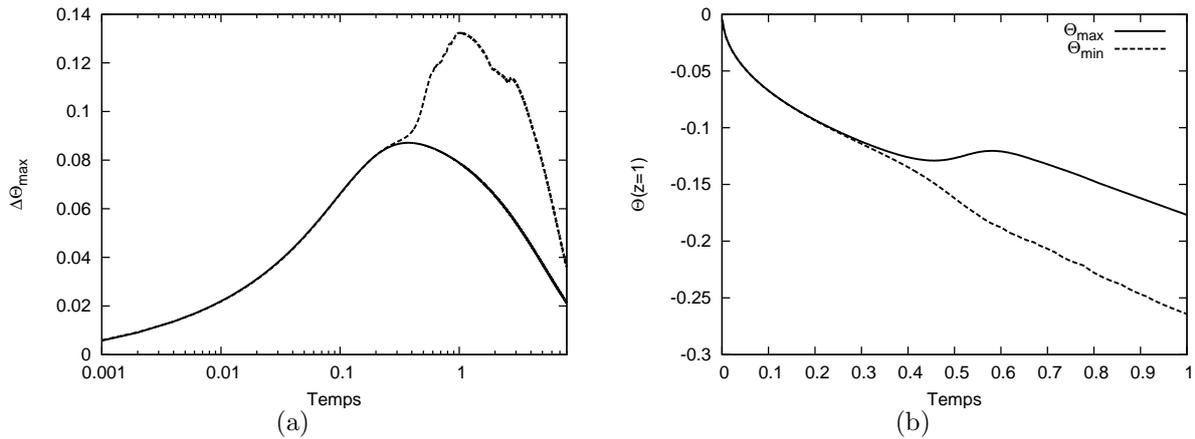


Figure 2.9 – (a) Evolution temporelle de $\Delta\Theta_{\max}$ (courbe pointillée) et superposition avec le cas diffusif (courbe pleine); (b) Evolution temporelle des maxima locaux de température en surface libre. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

Au fond, la température est plus élevée aux endroits où le liquide remonte (cf. valeurs positives en $z = 0$ sur la figure 2.10). La différence de température maximale est alors plus importante que dans le cas diffusif.

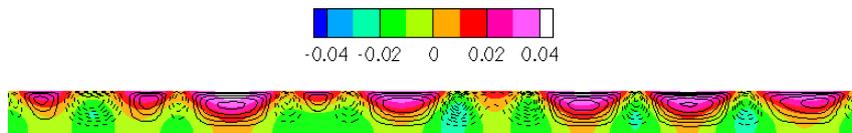


Figure 2.10 – Différence entre les champs de température convectif et diffusif ($\Theta_{cv} - \Theta_{diff}$), dans un plan de coupe vertical passant par l'axe de la cavité. Les iso-lignes de vitesse axiale sont représentées (traits pleins pour des valeurs positives, pointillés pour des valeurs négatives). Le temps est $t = 1$. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s et $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

2.2.2 Grandes épaisseurs, convection due à la poussée d'Archimède

Nous illustrons le caractère transitoire du problème sur un deuxième exemple pour lequel la poussée d'Archimède doit être prépondérante. L'épaisseur est $e = 30$ mm et la viscosité $\mu = 3500$ mPa.s. Les nombres de Marangoni et Rayleigh correspondant à ces paramètres sont $Ma = 50$ et $Ra = 3480$. On peut noter que la viscosité et donc le nombre de Prandtl sont bien supérieurs à l'exemple précédent ($Pr = 42000$ et $Bi = 6$).

Diffusion pure

On s'intéresse, comme dans le cas Marangoni, à l'état diffusif. La figure 2.11 montre, en échelle logarithmique, l'évolution de l'écart de température dans la couche fluide. Le temps durant lequel ce gradient est non négligeable s'étale entre 0 et 2. Le temps physique nécessaire à l'obtention de l'état homogène final est de 3000 secondes (cf. figure 2.4).

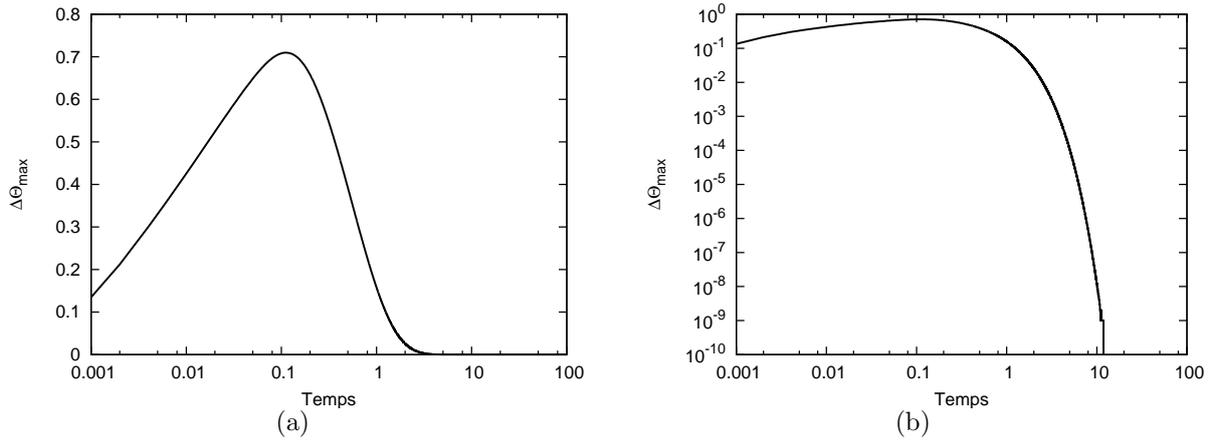


Figure 2.11 – (a) Evolution temporelle de $\Delta\Theta_{\max}$ (échelle logarithmique en temps). (b) échelle logarithmique en temps et en amplitude. ($e = 30$ mm)

Etat convectif

La figure 2.12(a) présente la vitesse axiale dans un plan de coupe vertical pour différents temps. Les iso-contours de vitesse axiale sont symétriquement répartis dans la cavité par rapport à la mi-hauteur. L'écoulement est ici majoritairement dû à la poussée d'Archimède. Le faible nombre de Marangoni est à l'origine de la légère perte de symétrie par rapport au plan horizontal passant par $z = e/2$.

La figure 2.12(b) présente l'évolution de la vitesse maximale dans cette configuration. Telle qu'elle est définie, la convection apparaît pour un temps voisin de 0.2. L'état convectif maximal est obtenu pour un temps voisin de 0.4.

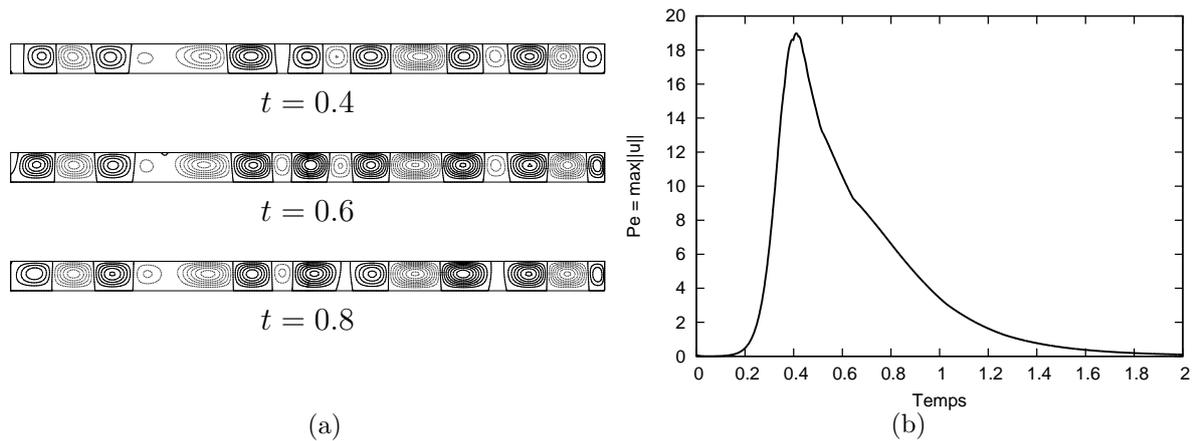


Figure 2.12 – (a) Vitesse axiale dans un plan de coupe vertical pour différents temps; (b) Evolution temporelle de la vitesse maximale. ($e = 30$ mm, $\mu = 3500$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

L'évolution de la vitesse maximale pour différentes viscosités est montrée en figure 2.13. Ici, la viscosité critique μ_c nécessaire au développement d'un état convectif est telle que $\mu_c \in [4500; 5500]$ mPa.s.

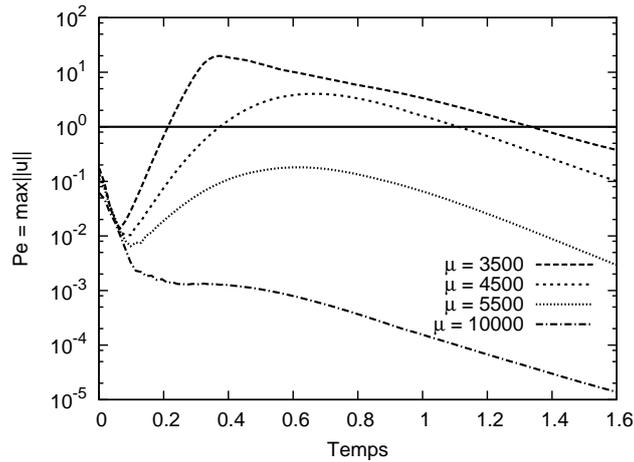


Figure 2.13 – Evolution temporelle de la vitesse maximale pour différentes viscosités $\mu \in [3500; 10000]$ mPa.s et, en trait plein, le critère définissant l'état convectif $Pe = 1$. ($e = 30$ mm et $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

L'évolution du champ de température est présentée en figure 2.14. Elle est sensiblement la même que pour le cas Marangoni bien que les temps caractéristiques ainsi que les motifs convectifs soient très différents. L'état diffusif est déstabilisé pour un temps $t_c \in$

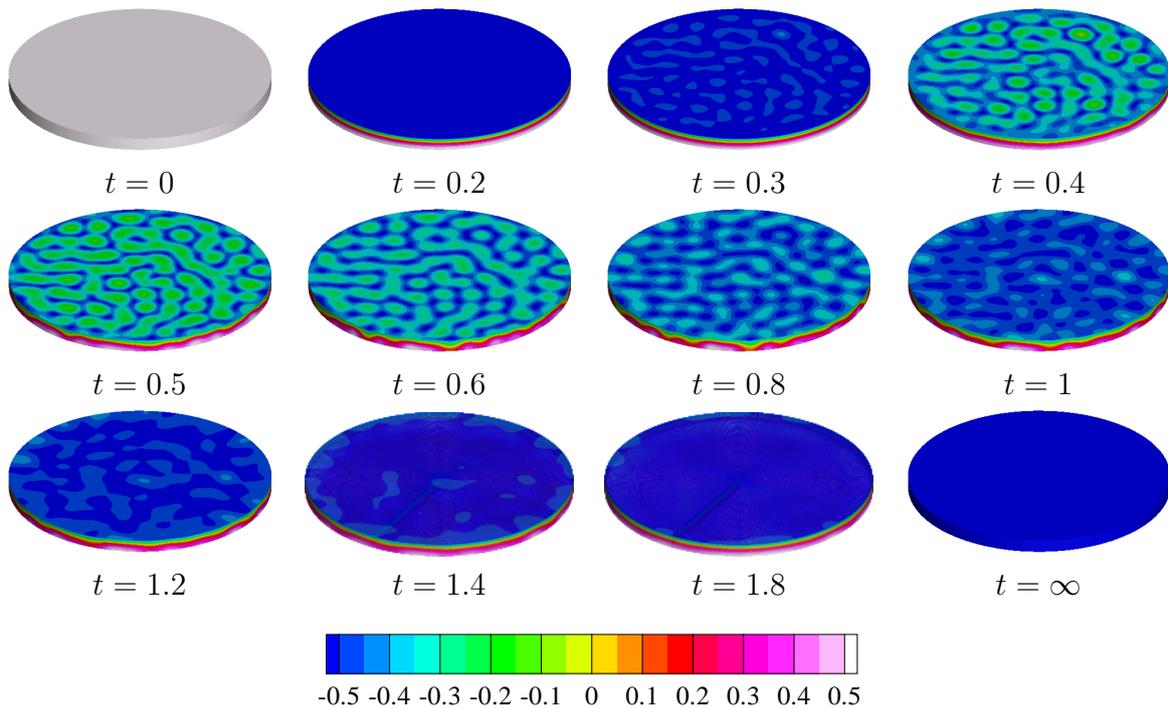


Figure 2.14 – Evolution du champ de température remis à l'échelle entre -0.5 et 0.5 au cours du temps. ($e = 30$ mm, $\mu = 3500$ mPa.s et $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

$[0.2; 0.3]$. Un état convectif se développe puis retourne vers un état diffusif puis homogène. Les structures convectives caractérisant l'état convectif sont plus complexes que dans la convection Marangoni. Un arrangement de rouleaux, caractéristiques d'écoulement de type Rayleigh-Bénard, et de cellules de convection sont nettement visibles ($t = 0.5$).

L'observation des iso-contours de température en surface libre (figure 2.15) confirme la complexité de la structure de l'écoulement.

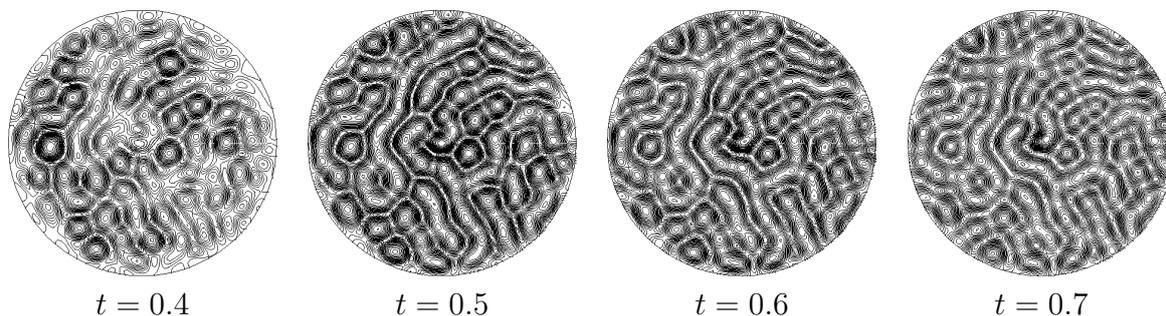


Figure 2.15 – Iso contours de températures en surface libres pour différents temps. ($e = 30$ mm, $\mu = 3500$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

Avec le critère $Pe = 1$, le temps critique d'apparition de la convection est $t_c = 0.225$. La validité de ce critère est vérifiée en comparant ce temps à celui obtenu en regardant l'écart entre la solution diffusif et $\Delta\Theta_{\max}$ (figure 2.16(a)) ainsi qu'à celui obtenu en regardant l'évolution des extréma locaux de température en surface libre (figure 2.16(b)). Comme dans le cas Marangoni, tous ces résultats sont cohérents. Seul le critère sur la vitesse sera gardé dans la suite.

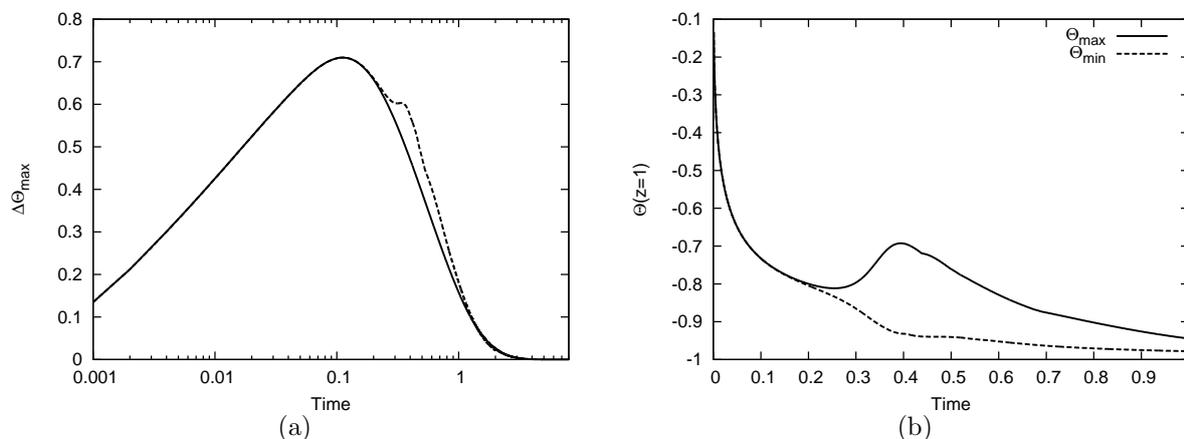


Figure 2.16 – (a) Evolution temporelle de $\Delta\Theta_{\max}$ (courbe pointillée) et superposition avec le cas diffusif (courbe pleine); (b) Evolution temporelle des extréma locaux de température en surface libre. ($e = 30$ mm, $\mu = 3500$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

2.3 Influence des conditions initiales

Le problème étant sensible aux conditions initiales, nous avons étudié cet aspect en détails. Une trop grande dépendance aux conditions initiales rendrait en effet l'étude de stabilité peu significative.

Afin de ne pas laisser les erreur numériques (liées aux schémas numériques) piloter le système, le champ initial de température est toujours perturbé. La perturbation se

décompose en le choix d'une amplitude et d'une distribution spatiale. La structure spatiale de la perturbation sera déclinée sous deux formes. On s'intéressera au cas où on applique une perturbation aléatoire et à celui où l'on perturbe localement et de façon contrôlée le champ initial.

2.3.1 Amplitude

L'impact de l'amplitude de la perturbation initiale est étudié ici. Pour se faire, une perturbation aléatoire est fixée. Seule l'amplitude de cette perturbation varie dans la suite, $a \in [10^{-9}; 10^{-3}]$. Les bornes sont choisies de telle sorte que l'on puisse observer un régime linéaire en début de simulation. Cela correspond à choisir une amplitude infinitésimale.

Le cas à faible épaisseur ($e = 1$ mm) est considéré. Penchons nous d'abord sur le cas où la viscosité est inférieure à la viscosité critique, $\mu = 3$ mPa.s. (On rappelle que la viscosité de transition μ_c appartient à l'intervalle $[5; 6]$ mPa.s (pour $a = 10^{-3}$).)

La figure 2.17(a) présente, en échelles logarithmiques, l'évolution temporelle du nombre de Péclet (Pe) pour différentes valeurs de l'amplitude de la perturbation initiale. On s'intéresse particulièrement à cette grandeur puisqu'elle est utilisée pour définir l'état convectif. Pour chaque amplitude, la perturbation initiale est dans un premier temps amortie. Elle est ensuite amplifiée pour des temps $t > 0.08$. L'effet de l'amplitude se fait surtout ressentir sur le temps d'apparition de la convection. Respectivement, $t_c = 0.324, 0.765$ et 1.310 pour des amplitudes $a = 10^{-3}, 10^{-6}$ et 10^{-9} . Aux temps longs, une fois l'état convectif maximal dépassé, l'effet de l'amplitude est faible : l'évolution du Pe est qualitativement la même, quelle que soit l'amplitude initiale choisie.

Si l'on regarde maintenant cette même évolution mais normalisée par sa valeur initiale (figure 2.17(b)), on observe la présence d'un régime linéaire en début de séchage, et ce jusqu'à un temps voisin de 0.4 (qui dépend de l'amplitude de la perturbation la plus forte, ici $a = 10^{-3}$). Au-delà de ce temps, les termes non-linéaires ne sont plus négligeables et se font sentir sur l'évolution de la vitesse.

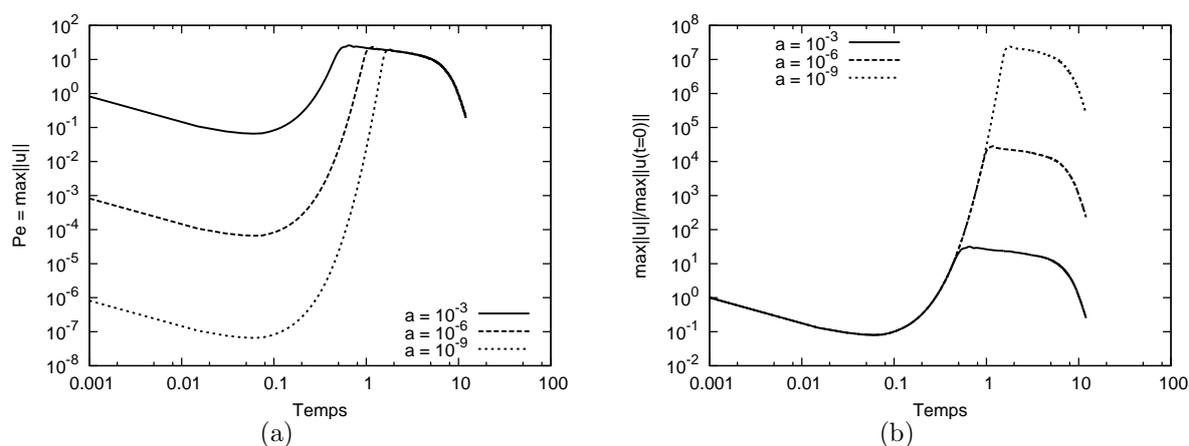


Figure 2.17 – Evolution temporelle, en échelles logarithmiques, (a) de $Pe = \max\|\mathbf{u}\|$ pour différentes valeurs de la perturbation initiale; (b) de $\max\|\mathbf{u}\|/\max\|\mathbf{u}(t = 0)\|$. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s et $A = 10$.)

Plaçons nous maintenant au voisinage du seuil de transition calculé pour une amplitude $a = 10^{-3}$. La viscosité correspondante est $\mu = 5.8 \text{ mPa.s} \simeq \mu_c$. La figure 2.18(a) présente l'évolution de Pe pour les trois amplitudes précédemment choisies. Pour $a = 10^{-3}$, la vitesse évolue jusqu'à un maximum voisin de l'unité tandis que pour des amplitudes plus faibles, les courbes d'évolution sont translatées vers des valeurs plus faibles. Respectivement, pour $a = 10^{-6}$ et $a = 10^{-9}$, le maximum de Pe au cours du temps est voisin de 10^{-3} et 10^{-6} . Avec le critère établi, l'état du système reste diffusif pour ces deux derniers cas. Il sera donc important de caractériser l'effet de l'amplitude de la perturbation sur le seuil de transition. Ce travail sera présenté en section 2.4.

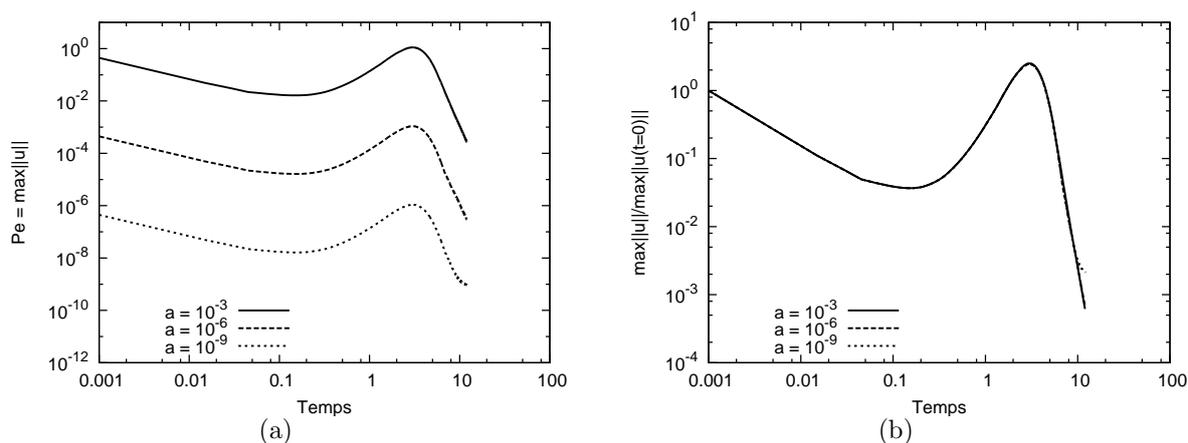


Figure 2.18 – Evolution temporelle, en échelles logarithmiques, (a) de $Pe = \max\|\mathbf{u}\|$ pour différentes valeurs de la perturbation initiale; (b) de $\max\|\mathbf{u}\|/\max\|\mathbf{u}(t=0)\|$. ($e = 1 \text{ mm}$, $\mu = 5.8 \text{ mPa.s}$ et $A = 10$.)

2.3.2 Structure

Tirage

Dans ce paragraphe, contrairement au précédent, l'amplitude de la perturbation est fixée, $a = 10^{-3}$, et on s'intéresse à l'effet du tirage aléatoire sur l'évolution des solutions du système. Afin de ne pas privilégier un ou plusieurs modes (radial ou azimutal) particulier, une distribution aléatoire d'amplitude fixée est superposée au champ de température initial.

Pour chaque couple épaisseur/viscosité, un jeu de $N = 100$ réalisations aléatoires différentes est parcouru, et on se penche sur les évolutions moyennées de Pe et $\Delta\Theta_{\max}$. (Les « $\bar{\bullet}$ » dénotent une moyenne d'ensemble.)

Convection due à l'effet Marangoni

La figure 2.19(a) présente l'évolution temporelle moyennée du nombre de Péclet, notée \overline{Pe} , ainsi que son écart type associé σ_{Pe} (représenté par les barres d'erreurs).

Le temps d'apparition de la convection est toujours défini par t_c tel que $Pe(t_c) = 1$. Il est a priori différent pour chaque réalisation. Si la vitesse maximale moyennée est prise comme référence, on obtient $\overline{t_c} = 0.29$. Ce temps peut aussi être encadré par les valeurs minimale et maximale pour lesquelles le critère de convection est franchi et dans ce cas,

$t_c \in [0.272; 0.315]$. Par rapport au temps de transition moyen \bar{t}_c on peut définir que le temps de transition pour cette configuration est $t_c = 0.29 \pm 6\%$.

L'évolution de l'écart maximum de température moyennée $\overline{\Delta\Theta_{\max}}$ et tracé en figure 2.19(b). Il est comparé à la solution diffusive (courbe pleine). L'effet du tirage initial se fait sentir dès lors que l'on quitte la solution diffusive mais de façon moindre que pour la vitesse. Le coefficient de variation n'est ici jamais supérieur à 3%. L'instant où l'évolution de $\overline{\Delta\Theta_{\max}}$ quitte la solution diffusive est toujours très voisin de $t = 0.3$.

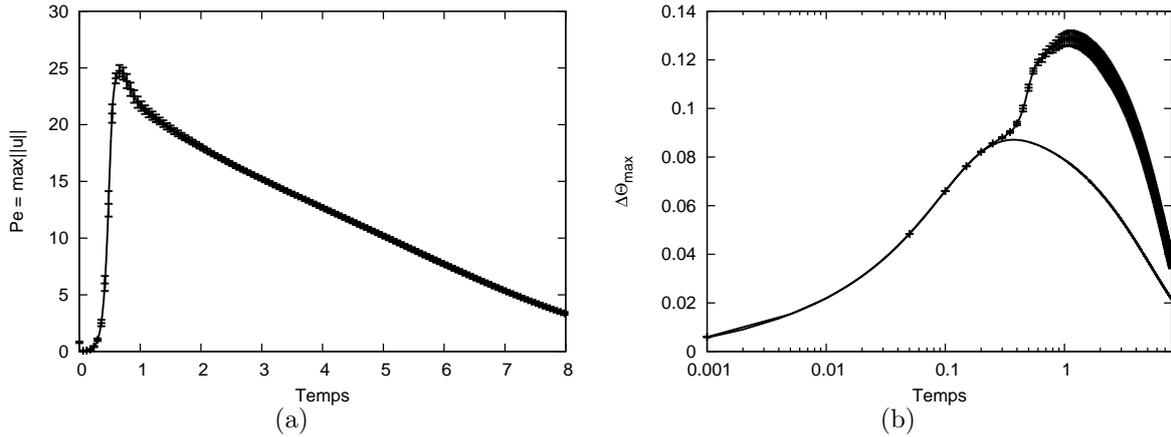


Figure 2.19 – (a) Evolution temporelle moyennée de $\overline{Pe} = \overline{\max||\mathbf{u}||}$ et de son écart type. (b) Evolution temporelle moyennée de l'écart maximal de température $\overline{\Delta\Theta_{\max}}$ et son écart type, et comparaison avec la solution diffusive (courbe pleine). ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

De la même manière que pour l'amplitude, l'impact de la distribution initiale est observé pour une viscosité proche de la viscosité de transition $\mu = 5.8$ mPa.s $\simeq \mu_c$. La figure 2.20 présente l'évolution moyennée de \overline{Pe} ainsi que de son écart type associé, représenté par les barres d'erreurs.

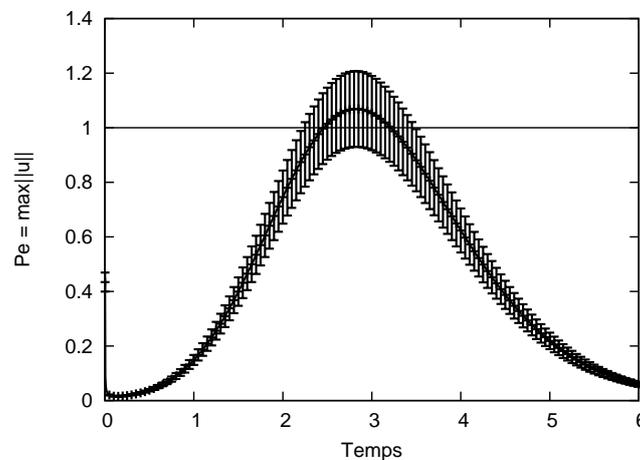


Figure 2.20 – Evolution temporelle moyennée de $\overline{Pe} = \overline{\max||\mathbf{u}||}$ et son écart type associé. ($e = 1$ mm, $\mu = 5.8$ mPa.s et $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

Le critère d'apparition de la convection est superposé aux courbes. Dans ce cas où le maximum au cours du temps du Péclet moyen se rapproche de l'unité ($\max_t \overline{Pe} \sim 1$), la dispersion standard par rapport à la moyenne évolue entre 10% et 15%. Un ensemble de réalisations franchit le critère définissant la convection tandis qu'un autre ne le franchit pas. L'erreur due au choix du tirage initial lors du calcul de seuils de transition sera discuté plus en détails dans la section 2.4.

Convection due à la poussée d'Archimède

L'estimation du tirage sur l'évolution des variables est également faite pour une épaisseur de 30 mm. La figure 2.21 présente l'évolution temporelle de \overline{Pe} ainsi que sa dispersion standard pour deux viscosités : $\mu = 3500$ mPa.s et $\mu = 4900$ mPa.s $\simeq \mu_c$.

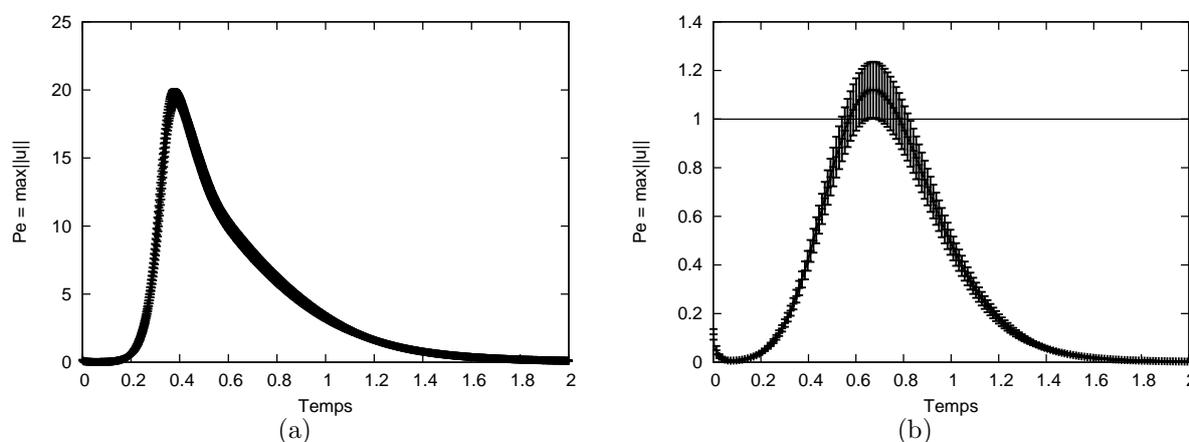


Figure 2.21 – (a) Evolution temporelle moyennée de $\overline{Pe} = \overline{\max\|\mathbf{u}\|}$ ainsi que de son écart type pour $\mu = 3500$ mPa.s et (b) pour $\mu = 4900$ mPa.s. ($e = 30$ mm et $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

Comme dans cas dominé par l'effet Marangoni, l'influence du tirage aléatoire se fait principalement ressentir lorsque la viscosité est voisine de la viscosité de transition. En effet, au voisinage du seuil, le coefficient de variation du nombre de Péclet ($CV(Pe)$) est d'environ 15%. Au-dessous de la viscosité de transition, $CV(Pe)$ est de l'ordre de 5% lorsque la convection est établie.

Mini-conclusion

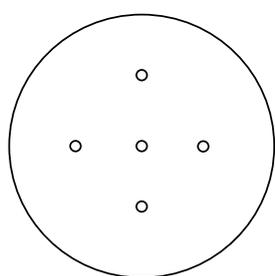
En conclusion, l'amplitude et le tirage caractérisant la perturbation ont une influence sur l'évolution des différentes variables du problème mais elle reste modérée. Dans les exemples traités, six ordres de grandeur sur l'amplitude modifient le temps de transition de moins d'un facteur 10. De même le nombre de Péclet varie d'un peu plus de 10% autour de sa valeur moyenne lorsque l'on se trouve au voisinage de la viscosité de transition. La répercussion de ces effets sur les seuils de transition sera étudiée dans la section suivante.

Mémoire de l'écoulement

On cherche dans ce paragraphe à mettre en évidence l'impact de la forme de la perturbation initiale sur l'évolution temporelle du champ de température. Cette étude est motivée par un précédent travail de Pasquetti *et al.* [54] qui met en avant la sensibilité

des structures de type Bénard-Marangoni à la forme de la perturbation initiale. Dans leur étude, ces auteurs ont étudié une géométrie cylindrique, et le facteur de forme est intermédiaire ($2.5 \leq A \leq 5$). Le fluide traité est non volatile ce qui permet d'observer un état stationnaire.

Les différentes perturbations appliquées ici sont similaires à celles utilisées par Wagner *et al.* [66] dans le cadre d'études de bifurcations dans des configurations Rayleigh-Bénard et Bénard-Marangoni. Au temps initial, le champ de température homogène est modifié au niveau de la surface libre à l'aide de perturbations gaussiennes. Les perturbations suivent une loi gaussienne d'écart type $\sigma = 0.1$ en rayon et en profondeur. La position des différentes perturbations est donnée en figure 2.22. Cela correspondrait, si l'on devait l'appliquer expérimentalement, à un ou plusieurs chauffages ponctuels.



- (a) perturbation en $r = 0$
- (b) perturbation en $r = 0$, $(r = \frac{A}{2}, \phi = \frac{\pi}{2})$ et $(r = \frac{A}{2}, \phi = -\frac{\pi}{2})$
- (c) perturbation en $r = 0$, $(r = \frac{A}{2}, \phi = 0)$, $(r = \frac{A}{2}, \phi = \frac{\pi}{2})$, $(r = \frac{A}{2}, \phi = \pi)$ et $(r = \frac{A}{2}, \phi = -\frac{\pi}{2})$
- (d) perturbation en $r = 0$ et $(r = \frac{A}{2}, \phi = \frac{\pi}{2})$

Figure 2.22 – Position et référencement des perturbations initiales de type gaussienne d'écart type $\sigma = 0.1$. La forme de la perturbation initiale pourra être choisie axi-symétrique (a), symétrique (b et c) ou non symétrique (d).

L'amplitude de la perturbation est fixée : $a = 10^{-3}$, et le facteur de forme est dans un premier temps $A = 2.5$ de sorte que toutes les structures qui se développent dépendent de cette perturbation initiale. Dans un second temps on choisit un facteur de forme plus important et on constatera que même si la trace de la perturbation initiale est bien visible, d'autres structures se développent dans les zones plus éloignées.

Effet Marangoni

Pour $e = 1$ mm et $\mu = 3$ mPa.s, la figure 2.23 montre l'évolution de la vitesse maximale pour différentes perturbations initiales. Globalement on voit que l'évolution est la même et, comme dans le cas où l'on fait varier le tirage aléatoire initial, la forme de la perturbation initiale a peu d'influence sur l'évolution temporelle de Pe .

Les iso-contours de température en surface libre sont présentés en figure 2.24. La mémoire de la forme de la perturbation initiale est évidente ; les structures axisymétrique (a), symétriques (b et c) et non symétrique (d) sont conservées.

On obtient des résultats similaires avec des facteurs de forme plus élevés. Les motifs que l'on n'impose pas se développent dans les zones éloignées de la perturbation. La figure 2.25 montre pour des facteur de forme $A = 5$ et $A = 10$ les iso-contours de température en surface libre pour un temps $t = 5$ et pour les perturbations (b), (c) et (d). La conservation de structure initiale est évidente. Les cellules convectives ont des géométries régulières. Des hexagones sont visibles aux endroits où les perturbations poncuelles ont été appliquées (par exemple en figure 2.25(b) pour $A = 10$).

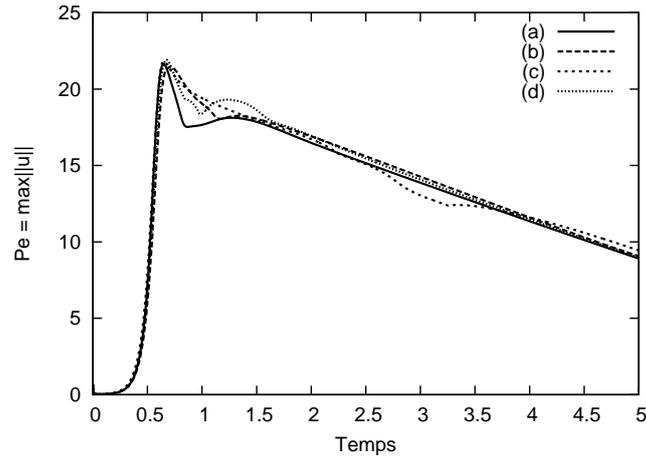


Figure 2.23 – Evolution de $Pe = \max \|\mathbf{u}\|$ pour différentes perturbations initiales ponctuelles. ($e = 1 \text{ mm}$, $\mu = 3 \text{ mPa.s}$ et $A = 2.5$.)

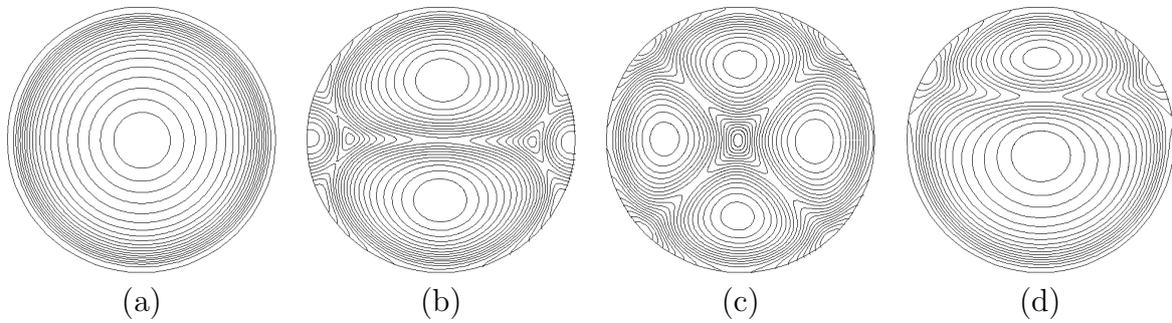


Figure 2.24 – Iso-contours de température en surface libre à $t = 1$ pour différentes perturbations initiales de type gaussienne appliquées en surface libre. ($e = 1 \text{ mm}$, $\mu = 3 \text{ mPa.s}$ et $A = 2.5$.)

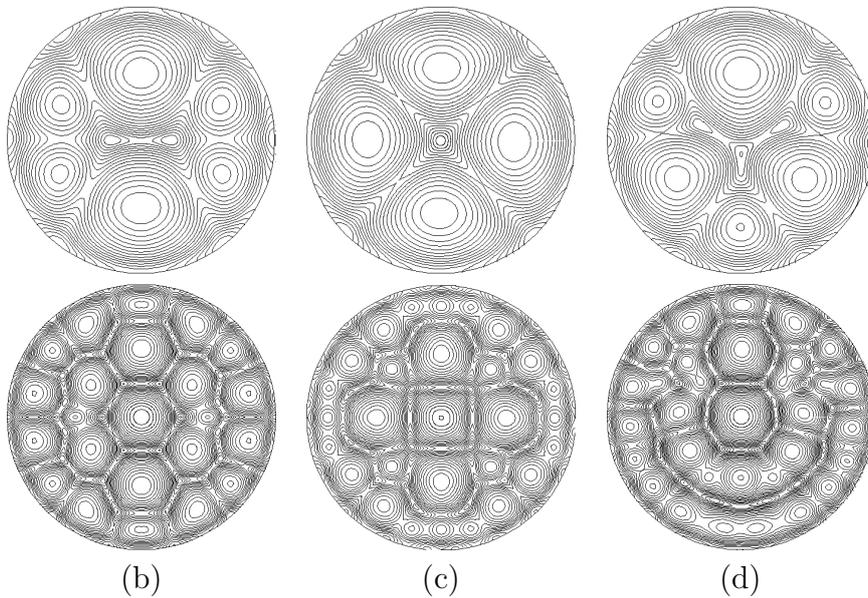


Figure 2.25 – Iso-contours de température en surface libre à $t = 5$ pour différentes perturbations initiales de type gaussienne appliquées en surface libre. De haut en bas pour un facteur de forme $A = 5$ (haut) et $A = 10$ (bas). ($e = 1 \text{ mm}$ et $\mu = 3 \text{ mPa.s}$.)

Poussée d'Archimède

La mémoire de la perturbation initiale est également vérifiée dans le cas où les effets gravitationnels dominent l'écoulement. La figure 2.26 présente les iso-contours de température relevés en surface libre pour $t = 0.7$. Le facteur de forme est $A = 2.5$. Les formes des structures observées sont bien entendu différentes de la configuration capillaire mais la mémoire de la perturbation initiale est une nouvelle fois mise en avant.

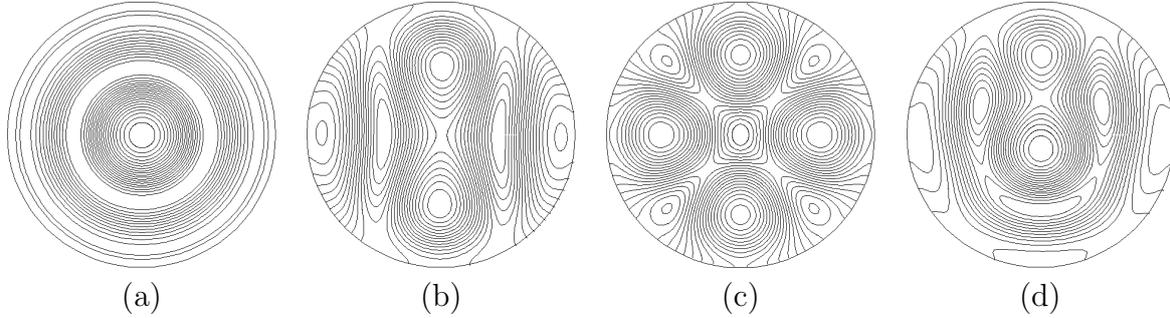


Figure 2.26 – Iso-contours de température en surface libre à $t = 0.7$ pour différentes perturbations initiales de type gaussienne appliquées en surface libre. ($e = 30$ mm, $\mu = 3500$ mPa.s et $A = 2.5$.)

Conclusion : Afin d'éviter ces effets de mémoire, nous utiliserons dans la suite uniquement des perturbations aléatoires.

2.4 Détermination des seuils de transition

Afin de comparer expériences et simulations, les seuils de transition sont exprimés dans le plan épaisseur/viscosité. Ils ont été calculés pour différentes épaisseurs ($e \in [0.5; 30]$ mm) par une procédure itérative sur la viscosité. La viscosité critique μ_c ainsi obtenue appartient à l'intervalle $[\mu_{\min}; \mu_{\max}]$, avec μ_{\min} la viscosité maximale pour laquelle un état convectif est observé ($Pe > 1$) et μ_{\max} la viscosité minimale pour laquelle le système reste diffusif ($Pe < 1$). L'intervalle contenant la viscosité critique est réduit, de sorte que $\left| \frac{\mu_{\min} - \mu_{\max}}{\mu_{\max}} \right| < 5\%$.

Les courbes de stabilité de l'écoulement sont présentées dans la suite en fonction de l'épaisseur e exprimée en mm, et de la viscosité μ en mPa.s. Lorsqu'elles sont visibles, les barres d'erreurs représentent l'intervalle $[\mu_{\min}; \mu_{\max}]$.

Comme établi dans les sections précédentes, les conditions initiales (amplitude et forme) ont un impact sur l'évolution des grandeurs du système. Leur impact sur les seuils de transition sera ici estimé. L'effet du confinement sera aussi observé. Enfin, les seuils de transition seront comparés avec ceux obtenus dans des études antérieures [65, 64, 26].

2.4.1 Régimes d'écoulement

Dans un premier temps, une amplitude $a = 10^{-3}$ et une perturbation issue d'une distribution aléatoire sont choisies (pour chaque épaisseur, la perturbation initiale est la

même). Le facteur de forme est égal à 10. On étudie de manière indépendante la stabilité de l'écoulement vis-à-vis de l'effet Marangoni ($Ra = 0$) ou de la poussée d'Archimède ($Ma = 0$). La figure 2.27 présente les seuils de stabilité obtenus pour trois régimes différents : un régime de Bénard-Marangoni (BM : $Ra = 0$), un régime de Rayleigh-Bénard (RB : $Ma = 0$) et un régime Rayleigh-Bénard-Marangoni (RBM). Pour chaque régime la partie au dessus de la courbe (vers les viscosités élevées) correspond à l'état stable diffusif du système.

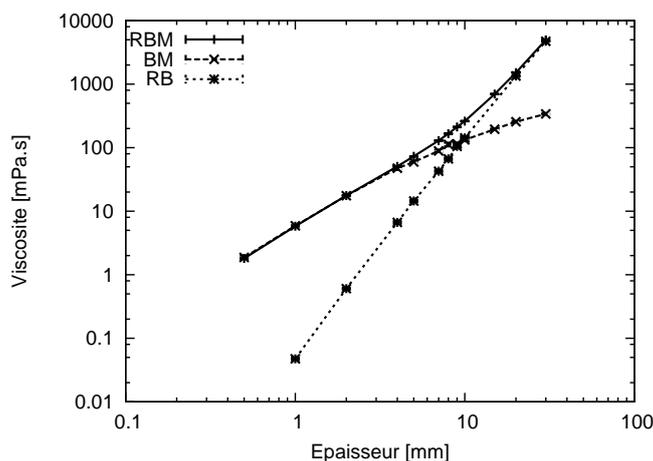


Figure 2.27 – Carte d'apparition de la convection pour les différents régimes considérés (BM, RM et RB). ($a = 10^{-3}$ et $A = 10$.)

La courbe de stabilité dans la configuration RBM est qualitativement la même que pour les configurations BM et RB respectivement aux petites (effet Marangoni) et grandes épaisseurs (poussée d'Archimède). Le changement de pente de la courbe de stabilité en configuration RBM s'effectue pour une épaisseur de liquide voisine du centimètre et elle marque la transition entre les deux régimes BM et RB. Au voisinage de cette zone, l'effet Marangoni et la poussée d'Archimède sont du même ordre de grandeur.

2.4.2 Influence de la perturbation initiale

Distribution aléatoire

En section 2.3, l'impact du tirage aléatoire initial sur l'évolution temporelle de $Pe = \max \|\mathbf{u}\|$ a été étudié. La question est de savoir si le choix du tirage initial change, et de combien, la détermination des seuils de transition. Pour y répondre, la procédure suivante est mise en œuvre :

On se place dans la configuration RBM. Pour chaque épaisseur la viscosité critique μ_c est comprise dans l'intervalle $[\mu_{\min}; \mu_{\max}]$. Par exemple, pour le cas $e = 1$ mm, $\mu_c \in [5.79; 5.83]$ mPa.s. Une viscosité est choisie dans cet intervalle, disons $\mu = 5.80$ mPa.s, et $N = 100$ simulations sont effectuées avec des perturbations initiales différentes issues de distributions aléatoires. Sont retenues ensuite les distributions qui amplifient au maximum et au minimum la perturbation initiale. Elles sont respectivement notées D^+ et D^- .

On applique alors la procédure itérative décrite en début de section 2.4 ce qui permet d'encadrer les viscosité critiques $\mu_c(D^+)$ et $\mu_c(D^-)$ propres aux deux distributions D^+ et D^- . Plusieurs épaisseurs sont testées et les différentes bornes qui délimitent $\mu_c(D^\pm) \in$

$[\mu_{\min}(D^\pm); \mu_{\max}(D^\pm)]$ sont données dans le tableau 2.1. Il en sort que l'écart relatif entre les viscosité extrêmes, que l'on a noté $\left| \frac{\mu_{\max}(D^+) - \mu_{\min}(D^-)}{\mu_{\max}(D^+)} \right|$, est au maximum de l'ordre de 4%. Cet écart représente l'incertitude propre au choix de la distribution aléatoire initiale sur les seuils de transition.

épaisseur	$\mu_{\min}(D^-)$	$\mu_{\max}(D^-)$	$\mu_{\min}(D^+)$	$\mu_{\max}(D^+)$	$\frac{\mu_{\max}(D^+) - \mu_{\min}(D^-)}{\mu_{\max}(D^+)}$
1	5.718	5.720	5.898	5.900	3.08%
4	50.12	50.25	52.12	52.25	4.07%
8	164.0	164.1	170.1	170.2	3.64%
15	688.9	689.1	710.0	710.1	2.98%
30	4875	4876	5028	5035	3.18%

Tableau 2.1 – Encadrement de la viscosité critique, pour deux distributions aléatoires différentes (D^+ et D^-), dans le cadre d'une configuration RBM. (e en mm, μ en mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

Amplitude

Cette erreur est à comparer avec celle commise par le choix de l'amplitude de la perturbation initiale. La figure 2.28 présente les seuils de stabilités correspondant à une configuration RBM pour plusieurs valeurs de l'amplitude. En prenant $a = 10^{-3}$ comme cas de référence, le fait de changer la valeur de l'amplitude décale les seuils de transition. Pour $a = 10^{-6}$ et $a = 10^{-9}$, l'écart par rapport au cas de référence varie avec l'épaisseur respectivement de 15% à 30% et de 26% à 45% pour des épaisseurs allant de 1 à 30 mm.

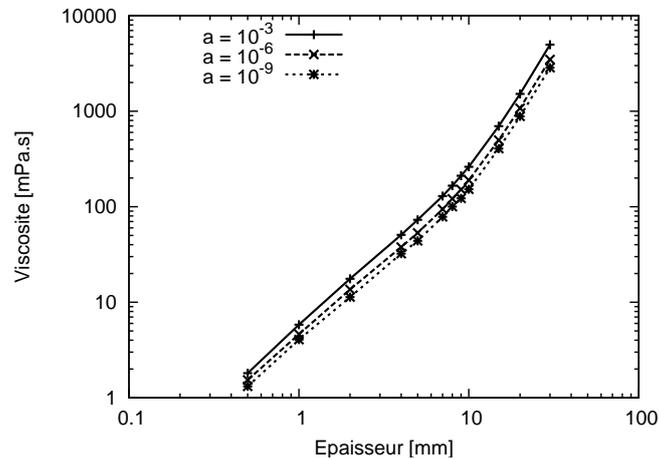


Figure 2.28 – Seuils de transition calculés pour différentes amplitudes ($a = 10^{-3}$, 10^{-6} et 10^{-9}) dans une configuration RBM. (Distribution aléatoire fixée et $A = 10$.)

Conclusion

Nous venons de voir que changer l'amplitude de la perturbation initiale peut décaler de plus de 30% les seuils de transitions. L'impact de la distribution aléatoire a quant à lui été borné, et il est inférieur à 5%. Une zone de transition dans laquelle les seuils de transition

dépendent de la condition initiale est alors définie. Cependant, l'effet de l'amplitude est faible comparée à la plage de variation de la viscosité ($\mu \in [1; 10^5]$). On obtient une zone de transition « fine » et l'étude de stabilité garde son sens.

2.4.3 Influence du confinement

On s'intéresse également à l'effet du confinement. Toujours pour un régime RBM, la figure 2.29 montre les seuils de transition pour différents facteurs de forme ($A = 1, 3$ et 10). En prenant comme référence $A = 10$, les seuils sont translatés vers les plus faibles viscosités d'environ 13% pour un facteur de forme $A = 3$ et de 42% pour $A = 1$. L'écoulement est stabilisé lorsque le facteur de forme est réduit. L'impact se fait surtout ressentir pour des cas où A tend vers l'unité. Des écarts similaires sont obtenus pour les configurations RB et BM.

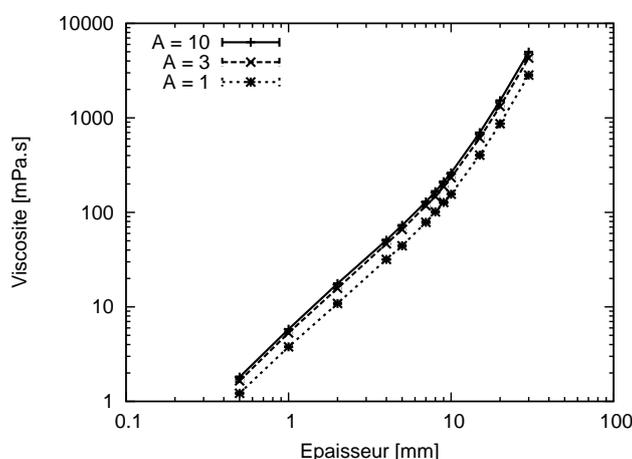


Figure 2.29 – Seuils de transition calculés pour différents facteurs de forme ($A = 10, 3$ et 1) et dans une configuration RBM. (Distribution aléatoire fixée et $a = 10^{-3}$.)

2.4.4 Comparaison avec des résultats antérieurs

Les seuils de transitions obtenus dans ce travail sont confrontés à ceux obtenus précédemment à cette étude, du point de vue expérimental et théorique [65] et numérique [64, 26].

Expérience

La faible influence du confinement sur les seuils de transition est intéressante dans l'optique d'une comparaison avec les travaux expérimentaux. En effet, dans la configuration expérimentale, la taille de la coupelle de verre est constante (en général le rayon R vaut 55 mm) tandis que l'épaisseur e de liquide varie entre 1 mm et 30 mm. Cela mène à des facteurs de forme expérimentaux $A \in [1.83, 110]$ ($A = 1.83$ pour $e = 30$ mm). Le coût des simulations numériques ne permet pas le calcul avec des facteurs de forme supérieurs à 10. Le fait que les seuils soient quasi-indépendants du facteur de forme (sauf pour $A \rightarrow 0$) permet une comparaison directe avec les données expérimentales. On les estime pour $A = 10$.

Dans la configuration physique (RBM), la figure 2.30 compare les seuils obtenus numériquement aux données expérimentales. Les barres d'erreurs délimitent la zone de transition dans laquelle la stabilité de l'écoulement dépend de l'amplitude de la condition initiale ($a \in [10^{-9}; 10^{-3}]$). Malgré la dispersion des valeurs expérimentales, la « frontière » entre les états diffusif et convectif est en bon accord avec l'expérience.

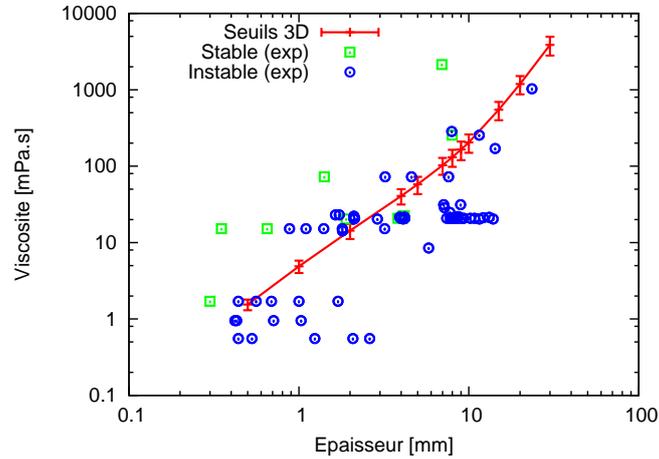


Figure 2.30 – Seuils de transition diffusif-convectif et données expérimentales ([65]). (Distribution aléatoire fixée, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

Comparaison à des travaux numériques

Carte de stabilité

La figure 2.31 présente les mêmes seuils que dans le paragraphe précédent, ici comparés à ceux issus de simulations numériques directes 2D en géométrie cartésienne [64]. Est également superposée l'étude de stabilité linéaire avec des modes non-normaux (MNN) [26] obtenue pour $G_v^* = 1$ et $G_T^* = 1$ (cf. section 2.1 page 35).

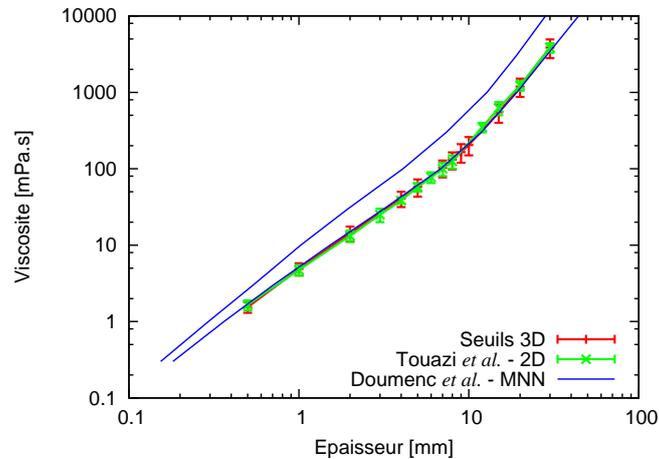


Figure 2.31 – Courbes de stabilité obtenues en configuration RBM avec les modèles bi-dimensionnel cartésien [64] (points verts), tri-dimensionnels (ce travail, courbe rouge) et MNN [26] (zone encadrée par les courbes bleues). ($A = 10$ et $a \in [10^{-9}; 10^{-3}]$.)

Ces résultats sur les seuils de transition obtenus par les différentes méthodes sont proches. Ils définissent la zone de transition entre les domaines stable et instable.

On note également que des comparaisons avec la géométrie 2D-cylindrique (N_ϕ) ont aussi été faites et que, par rapport au cas 3D, l'écart sur les seuils reste inférieur à 10% quelle que soit l'amplitude choisie.

Influence du nombre de Biot

Une autre comparaison est effectuée en étudiant le nombre de Marangoni critique (Ma_c) en fonction du nombre de Biot (Bi). Les nombres de Prandtl et de Rayleigh sont respectivement $Pr = 10$ et $Ra = 0$. Le facteur de forme reste $A = 10$. La figure 2.32 présente Ma_c et le temps de transition pour une large gamme de nombres de Biot.

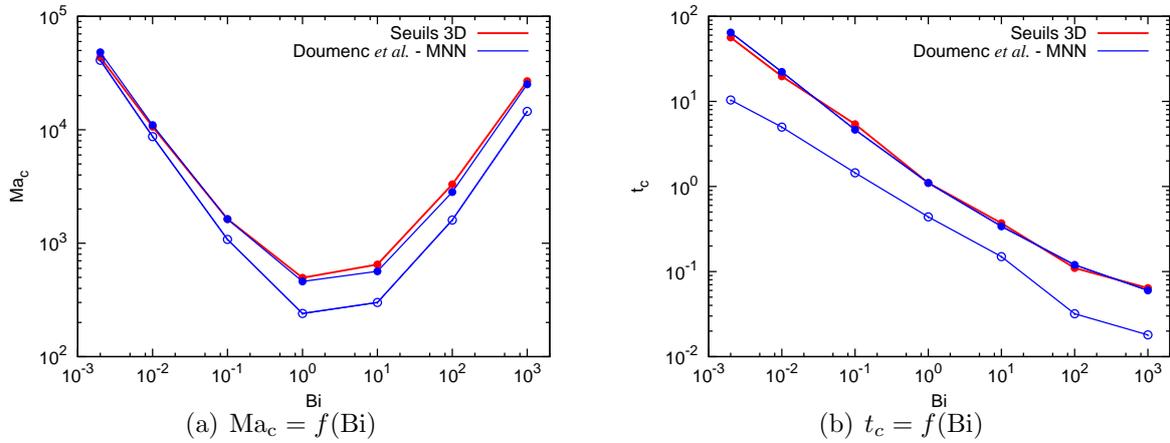


Figure 2.32 – Nombre de Marangoni et temps de transition. 3D (courbe rouge). MNN : Cercles : critère sur la température ($G_T^* = 1$). Ronds : Critère sur la vitesse ($G_v^* = 1$). ($Pr = 10$ et $Ra = 0$.)

Comme mentionné précédemment, la méthode non-normale ([26]) utilise un critère sur l'amplification de la perturbation initiale pour définir l'état convectif. Selon la grandeur observée, vitesse ou température, un Marangoni critique ainsi qu'un temps de transition sont estimés. Les résultats sur Ma_c et t_c , coïncident relativement bien avec ceux de [26] dont le critère porte sur la vitesse et avec nos simulations 3D.

Le cas $Ra_c = f(Bi)$ n'est pas présenté ici mais le comportement ainsi que les conclusions sur la comparaison sont similaires.

2.4.5 Conclusion

Au vu des comparaisons effectuées avec le modèle bi-dimensionnel non-linéaire et avec le modèle linéaire, l'étude tri-dimensionnelle confirme à la fois la détermination des seuils de transition diffusif-convectif et la sensibilité de ces seuils au choix de la perturbation initiale. La rupture de pente de la courbe de stabilité distingue les écoulements dominés par l'effet Marangoni (BM) et par la poussée d'Archimède (RB). Une zone de transition, dans laquelle la stabilité de l'écoulement dépend du choix des conditions initiales est mise en évidence. Elle est comparable à celles obtenues lors de travaux antérieurs [64, 26] et elle est petite par rapport à la plage de viscosité parcourue. Le modèle 3D conforte les résultats antérieurs et va nous permettre d'étudier la structure des écoulements convectifs engendrés ainsi que leur évolution temporelle.

2.5 Motifs convectifs

Lorsque l'effet Marangoni domine l'écoulement une organisation de cellules convectives plus ou moins régulière est visible. A l'aide de la décomposition de Voronoï et de l'outil moyenne sur $N = 100$ réalisations on essaie de caractériser ces motifs convectifs.

Evolution temporelle du nombre de cellules

Dans cette étude, les cellules convectives sont définies par leurs maxima locaux de température relevés en surface libre. La figure 2.33 présente l'évolution temporelle du nombre de cellules \overline{Nb} moyenné sur le nombre de réalisations ($N = 100$) et l'écart type associé.

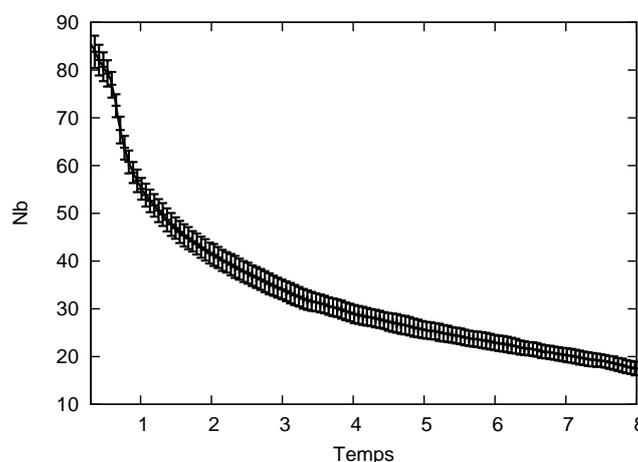


Figure 2.33 – Evolution temporelle du nombre moyen de cellules. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

Les simulations étant initialisées avec des perturbations issues de distributions aléatoires, le nombre de cellules (noté Nb) relevé avant l'apparition de la convection ($t < 0.3$) est un résidu de la perturbation initiale et n'est pas représentatif. Une fois la convection déclenchée, Nb évolue d'environ 80 unités jusqu'à une vingtaine pour un temps $t = 8$. Après le déclenchement, une coalescence rapide des cellules est observée. Leur nombre diminue rapidement. Pour des temps supérieurs ($t > 3$), la diminution est plus lente et quasi linéaire avec le temps. On peut remarquer que l'écart type est assez faible et représente une variation de ± 2 cellules par rapport à la moyenne.

Dans le but de caractériser l'écoulement, la décomposition de Voronoï (introduite en section 2.1 page 35) est appliquée. Les points p_i correspondent ici aux maxima locaux de températures. A titre d'exemple, les iso-contours de température relevés en surface libre ainsi que leurs décompositions de Voronoï sont présentés en figure 2.34.

Hormis aux temps courts ($t < 0.7$), pour lesquels la convection n'est pas encore bien développée ni l'écoulement bien structuré, la décomposition de Voronoï semble donner une bonne représentation des isothermes. Bien sûr, étant donné qu'elle est construite avec les maxima locaux de température, une partie de l'information contenue dans les minima est perdue. La détermination des frontières inter-cellules s'en trouve plus approximative. Une erreur est donc commise sur les plus petites cellules tandis que les plus grosses cellules

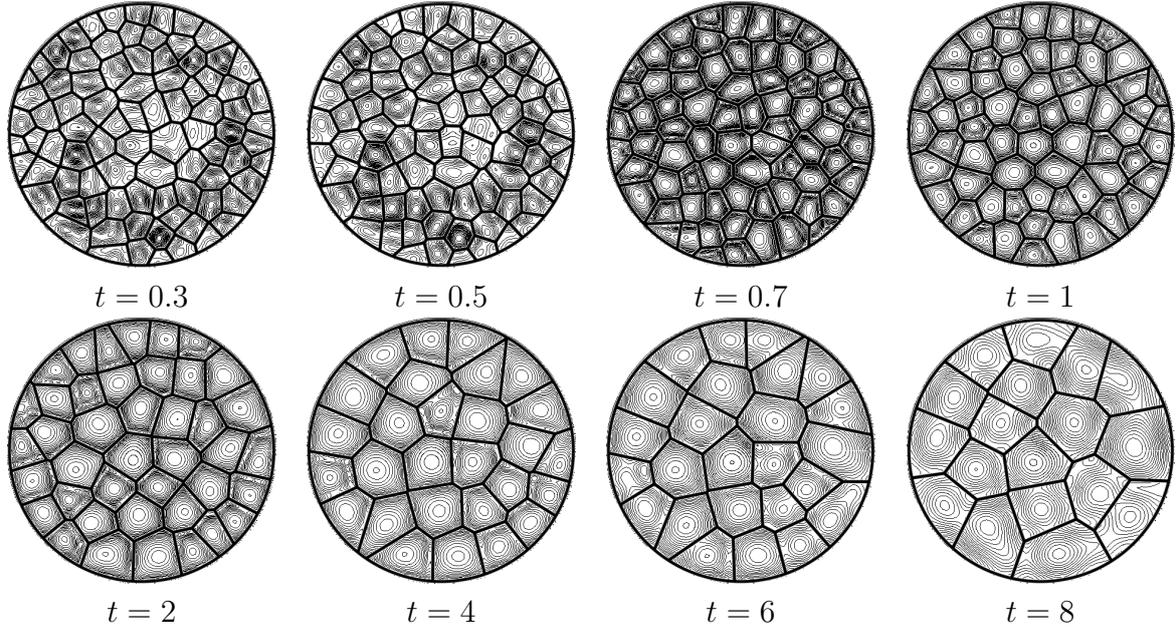


Figure 2.34 – Iso-contours de température en surface libre et décomposition de Voronoï associée pour différents temps. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

sont mieux reproduites. Dans le cas d'écoulement plus confinés, cette décomposition reste également représentative (figure 2.35).

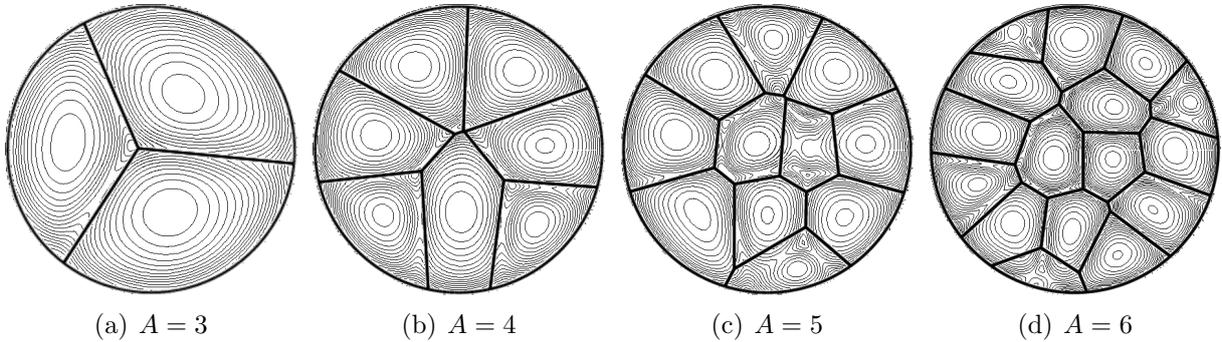


Figure 2.35 – Iso-contours de température en surface libre et décomposition de Voronoï associée pour différents facteurs de forme. ($t = 1.5$, $e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.set $a = 10^{-3}$.)

Estimation d'une longueur d'onde caractéristique - Décomposition de Voronoï

La décomposition de Voronoï que nous venons de présenter permet le calcul d'une longueur d'onde caractéristique de l'écoulement. La surface de chaque cellule reconstruite peut être calculée. En notant N_T le nombre total de cellules sur l'ensemble des réalisations, l'aire de la cellule i est noté S_i , avec $i = 1, \dots, N_T$. Une longueur d'onde caractéristique λ_i peut maintenant être définie par :

$$\lambda_i = \sqrt{S_i}, \quad (2.10)$$

et en moyennant sur l'ensemble des cellules, on obtient une longueur d'onde λ .

La figure 2.36 donne l'évolution de la longueur d'onde de l'écoulement. Elle évolue de 2 à 4 fois l'épaisseur de la solution.

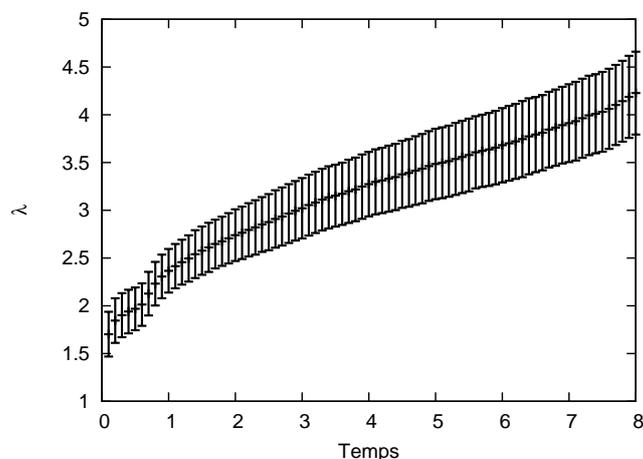


Figure 2.36 – Longueur d'onde estimée avec la décomposition de Voronoï. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

Géométrie des cellules

A l'aide du diagramme de Voronoï et en considérant uniquement les cellules internes (ne touchant pas la paroi de la cavité), une classification géométrique des cellules est effectuée. Pour chaque cellule, le nombre de côtés est relevé. Les plus petites arêtes sont filtrées (elles ne sont pas prises en compte si leur taille n'excède pas 10% de la taille de la plus grande arête). Chaque cellule peut ainsi être ramenée à un polygone dont le type peut aller de quadrangulaire à heptagonal. Dans des cas marginaux (moins de 1% des cellules), des polygones à 8 ou 9 côtés peuvent être obtenus. La figure 2.37 présente au cours du temps la proportion de chaque type de cellules dans la partie interne de l'écoulement.

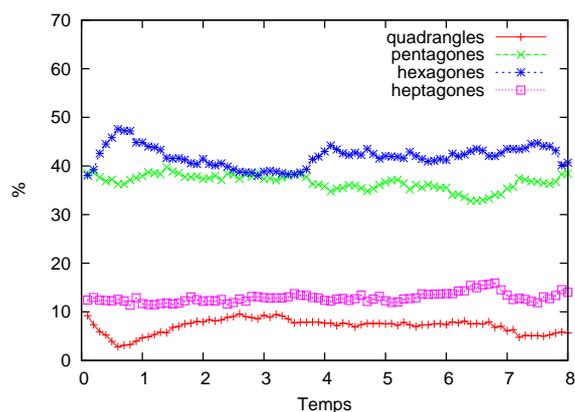


Figure 2.37 – Evolution temporelle du pourcentage de quadrangles, pentagones, hexagones et heptagones. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)

Il est observé que la majorité des cellules sont de type hexagonales (environ 45%) et pentagonales (environ 40%). Leurs proportions n'évoluent pas de façon significative au cours du temps.

Le nombre de cellules quadrangulaire frôle les 10%. Cette proportion est assez faible comparée aux observations de Eckert *et al.* [28] dans une configuration RBM classique. Les auteurs mettent en évidence à la fois une transition des cellules hexagonales vers des cellules quadrangulaires mais aussi la dépendance des cellules quadrangulaires avec le nombre de Prandtl. Pour des nombre de Prandtl et de Biot du même ordre que dans ce travail, ils observent une proportion de cellules quadrangulaires plus importante (environ 45%). Néanmoins ces cellules sont observées une fois l'état stationnaire obtenu et dans le cadre d'une couche de fluide infinie (périodicité dans les directions horizontales). Dans le cas d'un fluide volatile cette observation a également été faite numériquement par Merkt et Bestehorn [49] au voisinage du seuil de transition et expérimentalement par Mancini et Maza [46].

D'un autre coté, les cellules hexagonales ne sont pas majoritaires. Dans une configuration RBM établie [48] et pour des facteurs de forme modérés, Médale et Cerisier mettent en avant le fait que les cellules internes de l'écoulement sont hexagonales, quelle que soit la géométrie de la cavité (cylindrique, triangulaire, hexagonale). Une intégration temporelle est effectuée et la sélection des motifs se fait tôt dans le régime transitoire.

Il semblerait donc que le caractère transitoire du problème d'évaporation empêche l'observation d'un type de cellules dominant. Il reste à en étudier la régularité.

Avec l'idée que tout polygone convexe peut se décomposer en triangles, la dispersion des motifs par rapport au cas régulier peut être estimée à l'aide de la procédure suivante :

1. Chaque cellule est décrite par un polygone convexe d'ordre $p \geq 3$ et dont l'aire est notée S_i , $i = 1, \dots, N_T$. L'aire des triangles composant le polygone est notée s_j avec $j = 1, \dots, p$. Une structure régulière, de même aire et de même ordre polygonal, peut être associée à la cellule i . Son aire est S_i et l'aire de chacun de ses triangles élémentaires réguliers est :

$$s_r = \frac{S_i}{p} \quad (2.11)$$

2. Pour chaque cellule, l'écart quadratique moyen σ par rapport à la structure régulière est donné par la formule :

$$\sigma = \frac{1}{S_i} \sqrt{\frac{1}{p} \sum_{j=1}^p (s_j - s_r)^2} \quad (2.12)$$

Un dessin schématisant la procédure est donné en figure 2.38

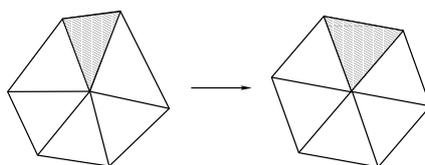


Figure 2.38 – Passage de la structure irrégulière à régulière. Les aires des polygones sont les mêmes. Le triangle hachuré de la structure irrégulière est comparé au triangle régulier.

Pour des structures de types quadrangulaires à heptagonales, la régularité des motifs est présentée en figure 2.39. Le comportement diffère selon le type de cellules observées.

Les cellules quadrangulaires (dont la proportion n'excède pas 10%) sont les plus régulières. Plus de 70% d'entre elles ont un écart quadratique moyen inférieur à 20%. Si l'on considère les structures hexagonales, l'écart quadratique moyen par rapport à l'hexagone régulier est compris entre 20% et 40% pour environ 70% des cellules.

La régularité des cellules qui se développent est bien éloignée de celle observée généralement dans le cas d'écoulements de type Bénard-Marangoni établis [48].

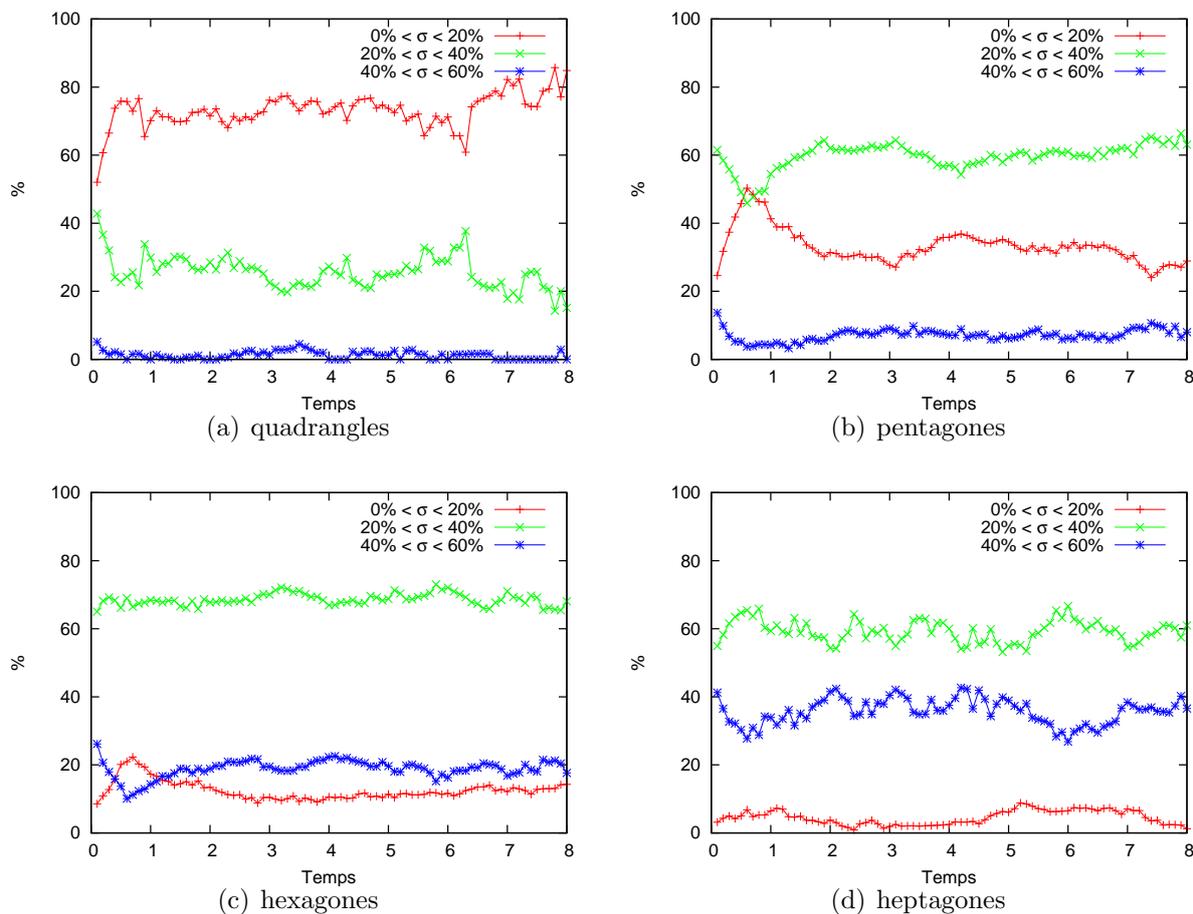


Figure 2.39 – Régularité des structures de type (a) quadrangulaire, (b) pentagonale, (c) hexagonales, (d) heptagonales.

Confinement

L'effet du confinement sur les structures est également étudié. La figure 2.40(a) montre pour différents temps l'évolution du nombre de cellules en fonction du facteur de forme. Pour des facteurs de forme supérieurs à 4, le nombre de cellules N_b est proportionnel à A^2 :

$$N_b(t) \sim C(t) \times A^2 \quad (2.13)$$

Pour des configurations plus confinées ($A < 4$), l'écoulement converge rapidement vers une structuration torroïdale (une seule cellule avec un écoulement ascendant au centre).

On peut en déduire que la longueur d'onde moyenne des motifs observés ne dépend pas du facteur de forme de la cavité pour $A > 4$. En effet en notant $\bar{\lambda}$ la longueur d'onde

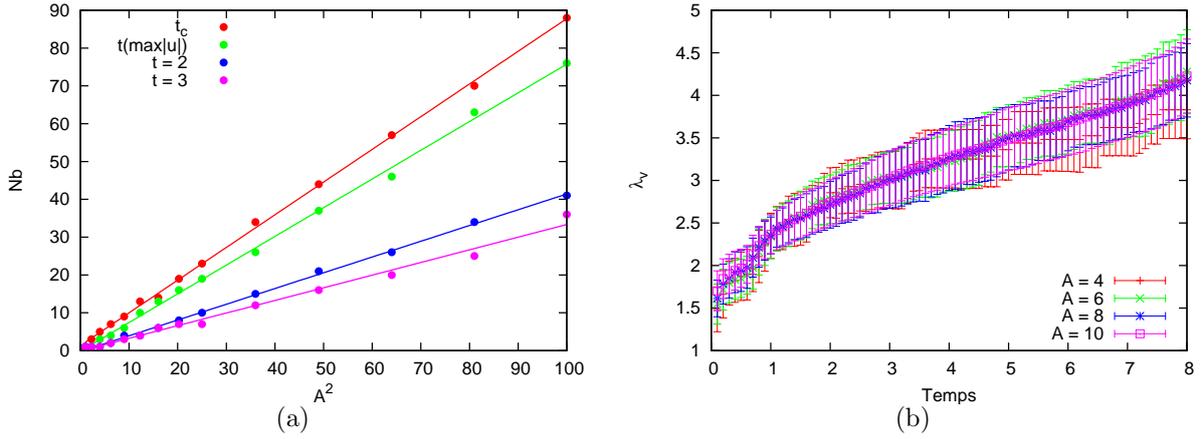


Figure 2.40 – (a) Nombre de cellules Nb en fonction de A^2 pour différents temps. (b) Evolution temporelle de la longueur d’onde pour différents facteurs de forme. Les barres d’erreurs représentent l’écart type.

moyenne et \bar{S} la surface moyenne des cellules, on a :

$$\bar{\lambda}(t) \sim \sqrt{\bar{S}(t)} \sim \sqrt{\frac{\pi A^2}{\text{Nb}(t)}} \sim \sqrt{\frac{\pi}{C(t)}} \quad (2.14)$$

Cette tendance est vérifiée si l’on regarde l’évolution de la longueur d’onde estimée avec la décomposition de Voronoï pour plusieurs facteurs de forme (figure 2.40(b)). Les évolutions moyennes et les écarts types sont qualitativement les mêmes.

2.6 Simulations des expériences tests

Nous terminons cette partie consacrée au problème thermique par la simulation d’expériences tests qui nous permettront de faire une comparaison thermique/solutal en fin de ce manuscrit. Les principales caractéristiques de ces cas (n° 1, 2 et 3) sont répertoriées dans le tableau 2.2. Les deux dernières lignes fournissent une estimation des rapports Ma/Ma_c et Ra/Ra_c . Les paramètres critiques sont ceux obtenus pour des configurations BM et RB. Comme attendu, les cas n° 1 et 3 sont respectivement dominés par l’effet Marangoni et par la poussée d’Archimède. Le cas n° 2 se situe dans la zone de transition (1 cm) ; les rapports Ma/Ma_c et Ra/Ra_c sont du même ordre de grandeur.

Le facteur de forme de la cavité est ici $A = 5$ pour les cas n° 1 et 3 ; le cas n° 2 est simulé avec $A = 4$. Les fréquences de coupures sont $(N_r \times N_\phi \times N_z) = (180 \times 128 \times 19)$ et le paramètre de mapping $\alpha = 0.99$ est utilisé dans la direction radiale. Le pas de temps est $\Delta t = 10^{-4}$ dans les cas n° 1 et 3. Le cas n° 2 nécessite un pas de temps plus petit, on utilise $\Delta t = 2 \times 10^{-5}$.

Les vitesses et longueur d’onde de l’écoulement dépendent du temps auquel on les observe. Des comparaisons qualitatives seront faites avec les données expérimentales (Exp.),

²On ne donne ici qu’une estimation puisque les seuils de transition dépendent de l’amplitude de la perturbation initiale.

Caractéristiques	Cas n° 1	Cas n° 2	Cas n° 3
e (mm)	1	8	23.5
μ (mPa.s)	1	21.5	1060
ΔT_s (K)	4.8	5	5
$\tau_{th} = e^2/\alpha$ (s)	10	664	7533
$\mathcal{U}_{th} = \alpha/e$ (mm/s)	9.6×10^{-2}	1.2×10^{-2}	4.1×10^{-3}
Ma	5850	2300	130
Ra	451	1200	5600
Pr	12	240	13000
Bi	0.2	1.6	4.7
Ma/Ma _c	~ 4	~ 4.6	~ 0.1
Ra/Ra _c	~ 0.04	~ 2.8	~ 1.5

Tableau 2.2 – Caractéristiques et échelles des différents cas. τ et \mathcal{U} sont les échelles caractéristiques de temps et de vitesse.

ainsi qu’avec les données issues de la méthode de stabilité linéaire³ (MNN). La comparaison avec le modèle transitoire bi-dimensionnel⁴ (2D) se fera à un temps fixé. Les variables sont exprimées en grandeurs dimensionnées. Les symboles « / » indiquent des informations impossibles à obtenir.

2.6.1 Cas n° 1

Pour différentes amplitudes de la perturbation initiale, la figure 2.41(a) donne l’évolution de la vitesse maximale pour des temps inférieurs à 8 secondes. Le critère définissant la convection est superposé ($Pe = 1$ correspond à la vitesse de diffusion \mathcal{U}_{th}). L’évolution pour des temps inférieurs à 100 est montrée en figure 2.41(b) pour une amplitude $a = 10^{-9}$. Les variables sont exprimées en grandeurs dimensionnées.

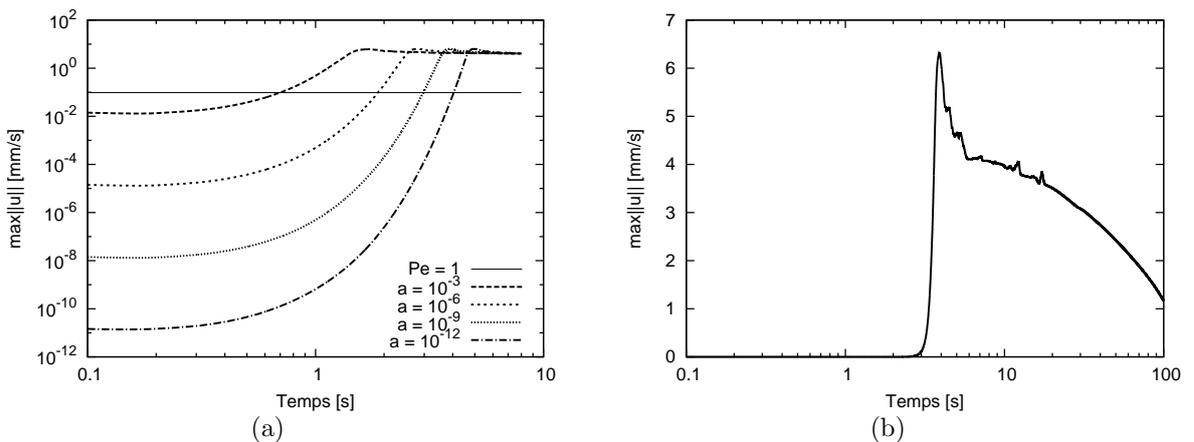


Figure 2.41 – Cas n° 1. Evolution des vitesses. (a) Pour différentes valeurs de l’amplitude ($a \in [10^{-12}; 10^{-3}]$ et $t < 8$ secondes). (b) Pour $a = 10^{-9}$ ($t < 100$ secondes).

³Communication F. Doumenc et B. Guerrier

⁴Communication E. Chénier

On retrouve sur ce cas les observations développées précédemment sur l'influence de la perturbation initiale le choix de l'amplitude conditionne le temps t_c d'établissement de la convection. La plage d'amplitude parcourue ($a \in [10^{-12}; 10^{-3}]$) est choisie de sorte qu'un état diffusif soit possible en début de séchage. (Elle correspond à des perturbations infinitésimales.) Pour ces amplitudes, on obtient $t_c \in [0.7; 4]$ secondes.

On note également que, pour des temps supérieurs à 4 secondes, l'évolution de la vitesse dépend peu de l'amplitude. La vitesse décroît alors lentement (état quasi-stationnaire). Une fois le régime quasi-stationnaire atteint, l'évolution des variables, et notamment du nombre de cellules (et donc de la longueur d'onde), est peu sensible à l'amplitude initiale. On présente l'évolution du champ de température en figure 2.42. En début de séchage le nombre de cellules N_b de convection diminue rapidement. Il passe d'une trentaine (4 secondes) à six unités (20 secondes). Pour des temps plus grands, N_b reste constant et on compte dans ce cas 6 cellules de convection.

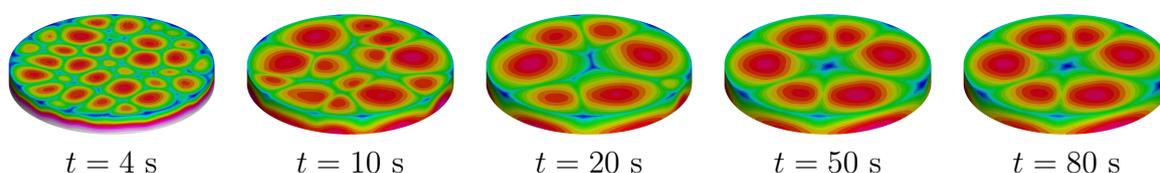


Figure 2.42 – Cas n° 1. Champ de température dans la couche pour différents temps. ($a = 10^{-9}$ et $A = 5$.)

Le temps critique, la vitesse ainsi que la longueur d'onde sont comparés aux études expérimentales et numériques (MNN et 2D). Le temps critique est encadré en faisant varier l'amplitude initiale. La vitesse et la longueur d'onde sont relevées pour un temps de 80 secondes. Le tableau 2.3 récapitule les grandeurs obtenues.

Dans les simulation numériques 2D, la perturbation est quelque peu différente, (se référer à [20] pour plus de détails) mais elle est toujours choisie pour permettre un état diffusif en début de séchage. La longueur d'onde est obtenue en comptant le nombre de cellules dans la cavité.

Au niveau expérimental la longueur d'onde est estimée « à la main » en calculant pour une cellule la distance moyenne de son centre à ceux de ses voisines.

	3D	Exp.	MNN	2D
t_c (sec)	0.7 à 4	≤ 1	0.1 à 3	0.6 à 2.5
Vitesse (mm/s)	1.65 ($t = 80$ s)	/	/	1.4 ($t = 80$ s)
λ (mm)	3.7 à 4.2 ($t = 80$ s)	2 à 4	1.3 à 1.9	3 à 5 ($t = 80$ s)

Tableau 2.3 – Cas n° 1. Comparaison des données

Il en ressort un bon accord avec les données expérimentales et les autres études. Le temps de transition diffusif-convectif est inférieur à 4 secondes. Tous les modèles numériques surestiment légèrement ce temps par rapport à l'expérience dans le cas où l'amplitude de la perturbation initiale est faible. On peut donc penser que la perturbation expérimentale est grande.

Au temps pour lequel la comparaison est effectuée, les vitesses des modèles transitoires 2D et 3D sont qualitativement les mêmes. On peut également voir que, même si l'écoulement est assez confiné ($A = 5$), la longueur d'onde 3D est comparable à celles

issues de l'expérience et du modèle 2D. L'analyse de stabilité linéaire donne des valeurs plus faibles.

Comme pour l'obtention des seuils de transition, le modèle 3D conforte les résultats antérieurs obtenus avec différents modèles et méthodes. Le coût des simulations étant trop important pour ce cas (340 heures CPU⁵ pour obtenir l'état diffusif final), il n'est pas envisageable d'effectuer des statistiques sur plusieurs calculs. L'étude statistique précédente ayant montré que l'effet des conditions initiales n'était pas important sur l'évolution des variables aux temps longs, nous pouvons penser qu'une étude statistique ne ferait que conforter les résultats obtenus.

2.6.2 Cas n° 2 et 3

Ces deux cas sont présentés de façon moins détaillée. On rappelle que le cas n° 2 est simulé avec $A = 4$, et le n° 3 avec $A = 5$. L'évolution de la vitesse est présentée en figure 2.43.

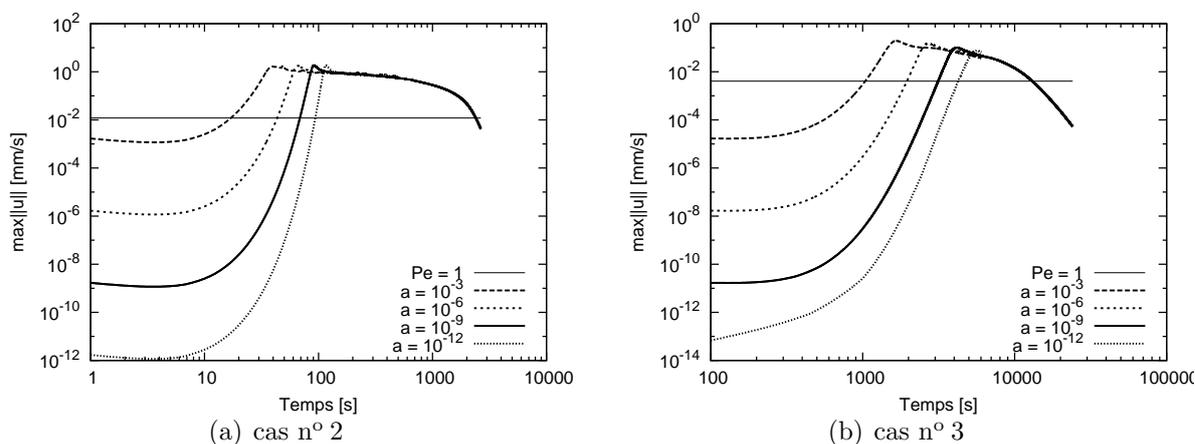


Figure 2.43 – Evolution des vitesses cas n° 2 et 3. Le critère définissant la convection est représenté.

Les champs sont présentés en figures 2.44 et 2.45. On peut noter dans le cas n° 3 la présence de rouleaux de convections caractéristiques d'un écoulement dominé par la poussée d'Archimède. La longueur d'onde 3D correspond à la largeur des rouleaux.

Les tableaux comparent les grandeurs caractéristiques du système. Les modèles numériques surestiment toujours le temps d'apparition de la convection. La vitesse issue de simulations 3D est de 20 à 40% plus élevée que celle du modèle 2D. Des simulations ont également été effectuées dans une configuration bi-dimensionnelle cylindrique (équivalent à $N_\phi = 1$). Les vitesses obtenues sont là aussi inférieures à celles provenant de simulations 3D.

2.6.3 Conclusion

La simulation des cas expérimentaux a confirmé les résultats déjà obtenus dans des études antérieures (linéaire et 2D). Les vitesses obtenues sont du même ordre de grandeur

⁵Processeur de type P575 cadencé à 1,9 GHz

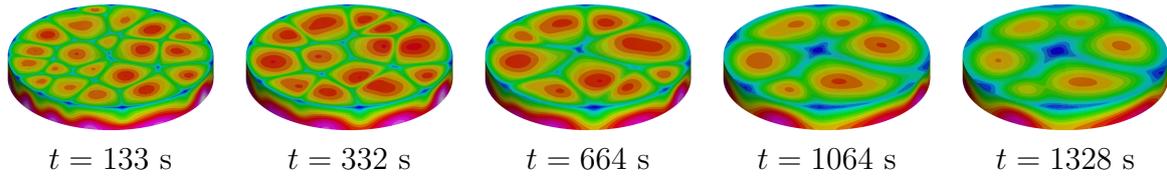


Figure 2.44 – Cas n° 2. Champ de température dans la couche pour différents temps. ($a = 10^{-9}$ et $A = 4$.)

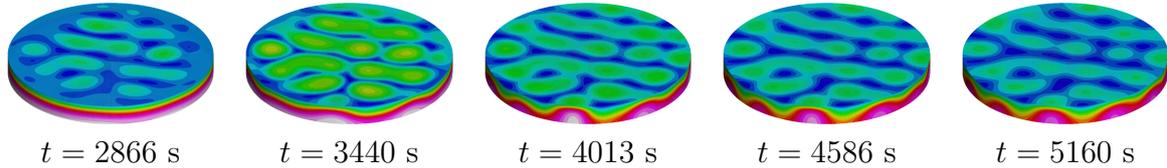


Figure 2.45 – Cas n° 3. Champ de température dans la couche pour différents temps. ($a = 10^{-9}$ et $A = 5$.)

	3D	Exp.	MNN	2D
t_c (sec)	13 à 79	2 à 7	2 à 70	14 à 71
Vitesse (mm/s)	0.45 ($t = 664$ s)	0.1 à 0.3	/	0.36 ($t = 664$ s)
λ (mm)	16.5 à 21 ($t = 664$ s)	5 à 15	8 à 15	18 à 21 ($t = 664$ s)

Tableau 2.4 – Cas n° 2. Comparaison des données

	3D	Exp.	MNN	2D
t_c (sec)	745 à 2350 s	≤ 100 s	70 à 3000 s	230 à 1600 s
Vitesse (mm/s)	0.046 ($t = 6030$ s)	~ 0.07	/	0.032 ($t = 6030$ s)
λ (mm)	49 à 56 ($t = 6030$ s)	/	40 à 60	~ 50 ($t = 6030$ s)

Tableau 2.5 – Cas n° 3. Comparaison des données

que les données expérimentales et en bon accord avec les simulations 2D. La longueur d'onde de l'écoulement est également retrouvée de manière qualitative.

2.7 Synthèse de la partie thermique

Dans cette partie dédiée à l'étude du problème thermique, la description du problème physique se fait à l'aide d'un modèle une-couche basé sur des observations expérimentales. Les hypothèses fortes sont la non prise en compte des effets solutaux, la constance de la viscosité et la non diminution de l'épaisseur de liquide. Les objectifs ont été de confronter les résultats issus de ce modèle 3D aux études antérieures et d'essayer de confirmer la présence d'un régime thermique en début de séchage en comparant les grandeurs caractéristiques obtenues. La plage d'épaisseur balayée dans notre étude s'étend de 1 à 30 mm.

Une méthode numérique de collocation pseudo-spectrale utilisant une formulation Chebyshev-Chebyshev-Fourier a été utilisée pour résoudre (dans une cavité cylindrique) les équations de Navier-Stokes et de l'énergie. La mise en œuvre des méthodes numériques a fait apparaître la sensibilité de l'ellipticité de l'opérateur polaire discret à la grille de

calcul. En effet, cet opérateur perd sa propriété d'ellipticité, pour des conditions aux limites de type Neumann, lorsque nous passons à sa version discrète sur une grille de Gauss-Radau. L'utilisation d'un mapping des points de collocation a permis de mettre en évidence la sensibilité de l'ellipticité à grille de calcul. L'erreur commise en utilisant cette transformation a été analysée et nous avons conclu que l'utilisation du mapping, qui pourtant dégrade la précision spectrale, peut s'avérer être un bon compromis si l'on veut s'affranchir d'un codage en variables complexes. Son implémentation est rapide et, moyennant une vérification rigoureuse des résultats obtenus, son utilisation engendre une erreur acceptable sur les différentes grandeurs (dans le cadre de cette étude). Cette analyse a donné lieu à un article paru dans *Journal of Computational Physics* en 2010 et qui a été placé en annexe.

Une fois la validation du code effectuée, nous avons pu l'utiliser dans le cadre du problème thermique d'évaporation. Dans ce problème transitoire, deux cas, l'un dominé par l'effet Marangoni, l'autre par la poussée d'Archimède ont été étudiés en détails. L'impact des conditions initiales a été estimé au moyen d'une étude statistique. En distinguant amplitude et structure de la perturbation initiale, nous avons montré que l'impact de l'amplitude était prépondérant mais ne changeait pas de manière significative l'évolution des variables aux temps longs. Seul l'état transitoire et le temps d'établissement de la convection s'en sont trouvés modifiés. L'impact modéré des conditions initiales a permis par la suite d'effectuer une étude de la stabilité de l'écoulement. En choisissant un critère pour définir l'état convectif, nous avons pu établir une carte de stabilité de l'écoulement en fonction de l'épaisseur et de la viscosité. Ces résultats, venus conforter ceux obtenus dans des études antérieures [64, 26] permettent de mettre en évidence le changement de nature des instabilités en fonction de l'épaisseur de la solution. Les plus petites épaisseurs sont dominées par l'effet Marangoni tandis que la poussée d'Archimède prévaut pour des épaisseurs plus importantes. La zone de transition de ces deux mécanismes se fait autour de 10 mm. Nous avons aussi mis en avant l'existence d'une zone de transition, dans laquelle la stabilité de l'écoulement dépend de l'amplitude de la condition initiale.

Dans le cadre de l'étude thermique, l'élargissement du modèle au cas tri-dimensionnel a permis d'étudier la structure de l'écoulement. Pour une configuration donnée, l'utilisation de la décomposition de Voronoï a permis à la fois de calculer une longueur d'onde caractéristique de l'écoulement, et d'évaluer le nombre et la régularité des motifs convectifs. Dans les cas traités, il est apparu que les géométries des cellules étaient majoritairement des pentagones ou des hexagones (en proportions équitables) et que ces cellules étaient peu régulières. Cette décomposition a également permis le calcul d'une longueur d'onde représentative de l'écoulement. Un article en cours d'acceptation dans *European Physical Journal - Special Topics* est joint en annexe.

Enfin, dans une dernière section, trois cas définis par des données expérimentales ont été simulés. Nous avons comparé les résultats obtenus à ceux d'études mentionnées précédemment ([65, 64, 26]). Des bons accords concernant les vitesses, le temps d'apparition ainsi que la longueur d'onde ont été observés et ont permis d'appuyer l'idée selon laquelle les motifs convectifs observés en début de séchage sont dus à des variations de température. L'étude du régime solutal associé à ce problème d'évaporation, et notamment la comparaison des grandeurs caractéristiques des régimes thermique et solutal, permettra d'aller plus loin dans l'analyse. C'est l'objet de la deuxième partie de ce mémoire.

Deuxième partie

Modèle solutal

Principales notations utilisées dans le problème solutal

Indices et exposants

c	valeur de transition
i	initial
int	interface
p	polymère
s	solvant
∞	référence
$*$	variable adimensionnée

Scalars

c	concentration, masse volumique réduite	$kg \cdot m^{-3}$
D	coefficient de diffusion mutuelle	$m^2 \cdot s^{-1}$
e	épaisseur de la solution	m
g	accélération de pesanteur	$m \cdot s^{-2}$
L	largeur de la coupelle	m
p	pression dans le liquide	Pa
t	temps	s
t_{lim}	temps de validité du modèle	s
u	composante horizontale vecteur vitesse	$m \cdot s^{-1}$
\bar{V}	volume spécifique	$kg^{-1} \cdot m^3$
v_{evap}	vitesse d'évaporation	$m \cdot s^{-1}$
w	composante verticale vecteur vitesse	$m \cdot s^{-1}$
x	abscisse	m
z	ordonnée	m

Scalars (suite)

β, β'	coefficients d'expansion volumique	<i>sans unité</i>
δ	épaisseur de perturbation	<i>m</i>
Δh	déflexion de l'interface	<i>m</i>
$\Delta\varphi$	échelle de variation de la fraction volumique de solvant	<i>sans unité</i>
γ	coefficient solutal de tension superficielle	<i>N · m⁻¹</i>
φ_s	fraction volumique de solvant	<i>sans unité</i>
ρ	masse volumique	<i>kg · m⁻³</i>
λ	longueur d'onde	<i>m</i>
μ	viscosité dynamique de la solution	<i>Pa · s</i>
ν	viscosité cinématique de la solution	<i>m² · s⁻¹</i>
σ	tension de surface	<i>N · m⁻¹</i>
τ	échelle de temps	<i>s</i>

Nombres adimensionnels

$A_i = L/e_i$	facteur de forme (initial)
$Ma = -\gamma\Delta\varphi e_i/\mu_i D$	nombre de Marangoni
$Pe_{\text{int}} = v_{\text{evap}} e_i/D$	nombre de Péclet d'interface
$Sc = \nu_i/D$	nombre Schmidt
$Ra = g\beta'\Delta\varphi e_i^3/\nu_i D$	nombre de Rayleigh

Paramètres numériques

a	amplitude de la perturbation
C_z	raison suite géométrique
Δt	pas de temps
N_x	nombre de maille dans la direction horizontale
N_z	nombre de maille dans la direction verticale
n	itération

Vecteurs

$(\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_z)$	base en coordonnées cartésiennes
\mathbf{e}_x	vecteur unitaire de l'axe horizontal
\mathbf{e}_z	vecteur unitaire de l'axe vertical
\mathbf{n}	vecteur normal
\mathbf{v}	vecteur vitesse

Autre

$\bar{\bullet}$	moyenne d'ensemble
$\langle \bullet \rangle$	moyenne spatiale
σ_{\bullet}	écart type

Chapitre 3

Modèle et méthodes numériques

Nous abordons dans cette deuxième partie la modélisation du régime à flux d'évaporation constant, comme annoncé dans l'introduction.

Ce chapitre introduit tout d'abord le modèle bi-dimensionnel utilisé pour décrire le régime convectif d'origine solutale. Dans le cas d'une solution polymère, des hypothèses simplificatrices sont proposées. A la différence du problème thermique, la mobilité de l'interface est prise en compte.

Ensuite les méthodes numériques utilisées pour résoudre le problème sont présentées. Elles reposent sur une formulation ALE des équations de conservation. La validation du code de calcul se fait avec une solution connue analytiquement.

3.1 Problème physique et modèle mathématique

3.1.1 Hypothèses

L'étude numérique présentée dans cette partie découle d'observations expérimentales. Un modèle simplifié permettant de traiter des écoulements convectifs d'origine purement solutale, basé sur un modèle mono-couche, est proposé. Comme nous l'avons précisé dans l'introduction, une partie des hypothèses simplificatrices provient de résultats expérimentaux obtenus dans le cadre de l'étude du séchage de solutions polymères ou plus généralement de la cinétique de séchage de fluides complexes.

L'écoulement est supposé bi-dimensionnel. La solution est placée dans une cavité de largeur L et d'épaisseur initiale e_i . Le facteur de forme initial de la cavité est noté $A_i = L/e_i = 10$. L'interface liquide-gaz est mobile mais reste plane tout au long du séchage. Cette hypothèse de surface libre plane et indéformable sera rediscutée par la suite. L'évaporation se fait en surface libre. On suppose un flux d'évaporation constant dans le temps, suite aux observations expérimentales. La figure 3.1 donne un aperçu de la configuration utilisée.

L'évolution de l'épaisseur de la solution est une fonction du flux d'évaporation. La figure 1(b) (en page 5) rappelle un exemple de la cinétique typique d'évaporation obtenue lors du séchage de solutions polymères. L'évolution du flux d'évaporation de solvant est présentée au cours du temps. Dans un premier temps ($t < 2000$ secondes), la chute du flux d'évaporation est due aux effets thermiques étudiés dans la première partie de ce travail. Ensuite, pour des temps compris entre 2000 et 8000 secondes sur cet exemple,

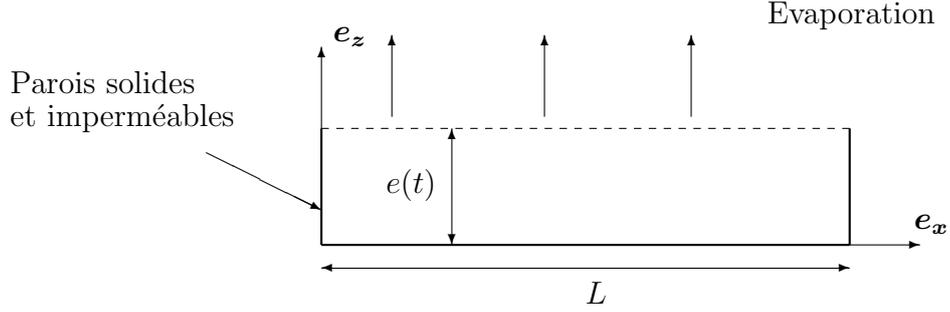


Figure 3.1 – Configuration bi-dimensionnelle

le flux d'évaporation atteint un plateau avec de faibles oscillations autour d'une valeur moyenne. Ces oscillations sont essentiellement du bruit (perturbation de la pesée par le courant d'air). On peut considérer que la température est homogène et que le flux d'évaporation de solvant est connu et uniforme sur toute la surface libre. La vitesse et donc la position de l'interface sont des données du problème. Dans le troisième régime, le flux d'évaporation chute brutalement dès lors que la pression de vapeur saturante devient fortement dépendante de la concentration en solvant. Pour les solutions polymères, l'activité de la solution, moyennant les hypothèses simplificatrices classiques, s'écrit comme le rapport entre la pression de vapeur saturante de la solution et la pression de vapeur saturante du solvant pur. Ce paramètre est proche de l'unité pour une large gamme de concentrations en solvant. Par exemple, dans le cas du système PIB/Toluene, l'activité est supérieure à 0.9 tant que la fraction volumique de solvant est supérieure à 40% [27]. (Ceci est typique des solutions polymères en général). En dessous de cette valeur, le modèle d'évaporation proposé ne sera plus valable et c'est pourquoi, par la suite, le domaine de validité des simulations numériques présentées est réduit à $\varphi_s > 0.4$, ou φ_s est la fraction volumique du solvant. Dans cette plage de concentration on suppose également que le coefficient de diffusion mutuelle D est constant [27], on prend $D = 10^{-10}$ m²/s.

L'hypothèse d'interface plane est justifiée tant que les effets dus à la gravité et à la variation de tension de surface s'opposent à la déformation de la surface libre par l'écoulement interne. Lorsque l'on est au voisinage du seuil de transition, cela se traduit par un nombre de crispation $Cr \equiv \mu D / \sigma e \ll 1$ et un nombre de Galilée $Ga \equiv g e^3 \rho / \mu D \gg 1$ (Regnier *et al.* [62]), où la vitesse de référence utilisée est la vitesse de diffusion. σ est la tension superficielle de la solution. Pour les simulations effectuées loin au-dessus du seuil, et conduisant donc à des vitesses bien supérieures à la vitesse de diffusion, ces critères ne sont plus suffisants et nous avons adopté la démarche suivante pour tester la validité de l'hypothèse a posteriori : à partir des champs de vitesse et de pression déterminés numériquement (avec une surface non déformable), le terme de contrainte normale à l'interface est calculé. Ce terme est ensuite traduit en déflexion de la surface, notée Δh , en le comparant à la pression de Laplace (σC , avec C la courbure) ou au terme issu de la gravité ($\rho g \Delta h$). Si l'un des deux effets (gravité ou tension de surface) conduit à une déflexion très inférieure à l'épaisseur, l'hypothèse d'interface plane sera considérée valide. En particulier, pour des simulations effectuées avec une viscosité fortement dépendante de la concentration en solvant, cette hypothèse d'interface plane peut devenir non valide au bout d'un certain temps [62]. En effet, l'épaisseur de la solution décroît tandis que la viscosité augmente considérablement. On précisera en section 4.4 la durée de validité de

cette hypothèse.

L'approximation de Boussinesq est utilisée. Excepté dans les termes moteurs de l'écoulement, les volumes spécifiques \bar{V}_s du solvant et \bar{V}_p du polymère sont supposés égaux et la masse volumique de la solution est considérée constante. Les relations linéarisées suivantes sont utilisées pour exprimer la dépendance avec la concentration de la masse volumique ρ et de la tension de surface σ . A température constante et en négligeant les variations de masse volumique liées aux termes de pression, la variation de la masse volumique dépend de la variation en concentration. Au premier ordre, on obtient :

$$\rho = \rho_\infty + \rho_\infty \left(\frac{\partial \rho}{\partial c_s} \right)_{p,T} \frac{(c_s - c_\infty)}{\rho_\infty} \quad (3.1)$$

avec ρ et c les masses volumiques et concentrations du solvant (indice "s") et de l'état de référence (indice ∞). Si on choisit comme référence le solvant pur (0), on a :

$$\begin{aligned} \rho &= \rho_0 + \rho_0 \left(\frac{\partial \rho}{\partial c_s} \right)_{p,T} (\varphi_s - 1) \\ &= \rho_0 (1 + \beta (1 - \varphi_s)) \end{aligned} \quad (3.2)$$

et on choisit un comportement linéaire de la masse volumique avec la concentration, d'où :

$$\beta = - \left(\frac{\partial \rho}{\partial c_s} \right)_{p,T} \simeq \frac{\rho_1}{\rho_0} - 1 \quad (3.3)$$

avec ρ_1 désignant la masse volumique du soluté pur. Dans le cas du système PIB/Toluène, on obtient $\beta = 5.89 \times 10^{-2}$

Si l'on prend comme état de référence la concentration initiale ρ_i , on a de même :

$$\rho = \rho_i (1 + \beta' (\varphi_{si} - \varphi_s)) \quad (3.4)$$

avec

$$\beta' = \frac{\beta}{(1 + \beta (1 - \varphi_{si}))} \quad (3.5)$$

On utilise l'expression suivante pour la variation avec la concentration de la tension de surface :

$$\sigma = \sigma_0 + \gamma (1 - \varphi_s) \quad (3.6)$$

et

$$\sigma = \sigma_i + \gamma (\varphi_{si} - \varphi_s) \quad (3.7)$$

σ_0 et σ_i représentent respectivement la tension de surface du solvant pur et de la solution initiale. Le coefficient massique de tension superficielle γ est tel que :

$$\gamma = - \frac{\partial \sigma}{\partial \varphi_s} \simeq \sigma_1 - \sigma_0 \quad (3.8)$$

Dans le cas d'une solution PIB/Toluène, on a $\sigma_1 = 33.9$ mN/m, $\sigma_0 = 28.5$ mN/m et $\gamma = 5.4$ mN/m.

Le fluide est supposé incompressible et newtonien mais la viscosité μ peut dépendre fortement de la concentration en solvant. Dans le cas de solutions polymères, la viscosité peut varier de plusieurs ordres de grandeur avec la concentration en solvant. Un des objectifs de ce travail étant d'analyser le rôle de la viscosité dans le phénomène de séchage, des études comparatives entre viscosité constante et variable seront systématiquement faites. Pour les simulations numériques mettant en jeu une viscosité variable, une loi empirique déduite de mesures effectuées avec un rhéomètre Low Shear 30 pour une solution Polyisobutylène-toluène (PIB/toluène) [31] est utilisée. L'évolution de la viscosité avec la concentration en solvant a été présentée en figure 1(a) (page 5).

La loi empirique utilisée, déduite des résultats expérimentaux, relie la viscosité à la fraction volumique de solvant. On a :

$$\mu = F(\varphi_s) \quad (3.9)$$

où F est la fonction définie par

$$F : [0, 1[\mapsto]0, +\infty[\\ X \mapsto \log_{10}^{-1} \left(a_0 + \sum_{i=1}^4 a_i (\log_{10} (1 - X))^i \right) \quad (3.10)$$

avec

$$(a_0, a_1, a_2, a_3, a_4) = (8.235, 14.02, 6.575, 1.392, 0.1114) \quad (3.11)$$

Les différentes propriétés et paramètres physiques propres au mélange sont répertoriés dans le tableau 3.1.

ρ	D	γ	β	v_{evap}
866	10^{-10}	5.4×10^{-3}	5.89×10^{-2}	3×10^{-3}

Tableau 3.1 – Tableau récapitulatif des différents paramètres du problème solutal (valeurs correspondant à une expérience typique, exprimées en unité S.I.)

3.1.2 Equations de l'écoulement

Etant donnée la présence d'un fluide binaire (solvant + polymère), les variables permettant de définir la solution dépendent des proportions en solvant et en polymère. Ainsi, si l'on note ρ la masse volumique de la solution, on a :

$$\rho = c_s + c_p \quad (3.12)$$

où c est la masse volumique partielle (masse de constituant par unité de volume). En introduisant les fractions volumiques du solvant et du polymère, la relation précédente devient :

$$\rho = \frac{\varphi_s}{V_s} + \frac{\varphi_p}{V_p} \quad (3.13)$$

On introduit aussi la fraction massique (masse d'un constituant sur la masse totale de la solution). Pour le solvant celle ci s'écrit $\omega_s = c_s/\rho$. Il s'agit là d'un problème de couplage

de transport de masse et de quantité de mouvement, la vitesse de référence à utiliser dans ce type de configuration est la vitesse moyenne massique (voir par exemple Cussler [23]). On note cette vitesse $\mathbf{v} = u \mathbf{e}_x + w \mathbf{e}_z$, et avec les relations précédentes, on obtient :

$$\mathbf{v} = \frac{c_s \mathbf{v}_s + c_p \mathbf{v}_p}{\rho} = \omega_s \mathbf{v}_s + \omega_p \mathbf{v}_p \quad (3.14)$$

Expression du terme de pression p

Le terme de pression est écrit sous la forme $p = p_h + \tilde{p}$ où p_h est la pression hydrostatique et \tilde{p} l'écart à la pression hydrostatique dû à l'écoulement.

En l'absence de mouvement ($\mathbf{v} = \mathbf{0}$) et avec $\rho = \rho_i$, on a :

$$(-\nabla p_h + \rho_i \mathbf{g}) \cdot \mathbf{e}_z = 0 \quad (3.15)$$

soit

$$p_h = p_\infty - \rho_i g z \quad (3.16)$$

En présence de mouvement le terme $(-\nabla p + \rho \mathbf{g})$ des équations de Navier-Stokes dans la direction \mathbf{e}_z s'écrit :

$$\begin{aligned} (-\nabla p_h - \nabla \tilde{p} + \rho \mathbf{g}) \cdot \mathbf{e}_z &= -\frac{\partial \tilde{p}}{\partial z} - (\rho - \rho_i) g \\ &= -\frac{\partial \tilde{p}}{\partial z} - \rho_i \beta' (\varphi_{si} - \varphi_s) g \quad \text{d'après 3.4} \end{aligned} \quad (3.17)$$

Dans la suite le terme de pression est l'écart par rapport à la pression hydrostatique et le « $\tilde{}$ » sera omis.

Ecriture des équations

Pour les inconnues \mathbf{v} et p définies ci-dessus on peut écrire à présent les équations de conservation. Avec les hypothèses faites précédemment, les équations de Navier-Stokes incompressibles sous l'approximation de Boussinesq et la conservation de la fraction volumique de solvant s'écrivent :

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathbf{div} \mathbf{v} = 0 \\ \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} = \frac{1}{\rho} (-\nabla p + \mathbf{div} (\mu \nabla \mathbf{v} + \mu \nabla^t \mathbf{v})) - g \beta' (\varphi_{si} - \varphi_s) \cdot \mathbf{e}_z \\ \frac{\partial \varphi_s}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) \varphi_s = D \nabla^2 \varphi_s \end{array} \right. \quad (3.18)$$

3.1.3 Conditions aux limites

L'interface descend au cours du temps. La vitesse de descente est supposée connue et fixée par la vitesse d'évaporation, laquelle est supposée constante durant toute la simulation. On note cette vitesse $\mathbf{v}_{evap} = v_{evap} \mathbf{e}_z$. En conséquence, la position de l'interface est une donnée du problème :

$$e(t) = e_i - v_{evap} \times t \quad (3.19)$$

Aux parois solides (en $x = 0$, $x = L$ et $z = 0$) on suppose l'adhérence aux parois ainsi que leur l'imperméabilité, ce qui s'écrit :

$$\mathbf{v} = \mathbf{0} \quad (3.20)$$

et

$$\frac{\partial \varphi_s}{\partial \mathbf{n}} = 0 \quad (3.21)$$

En surface libre ($z = e(t)$) l'équilibre mécanique nous donne la condition suivante pour la composante u de la vitesse :

$$\mu \frac{\partial u}{\partial z} = \frac{\partial \sigma}{\partial \varphi_s} \frac{\partial \varphi_s}{\partial x} = -\gamma \frac{\partial \varphi_s}{\partial x} \quad (3.22)$$

Pour la condition sur la composante w de la vitesse il faut repartir de la loi de Fick qui nous donne le flux local de solvant. La densité de flux de solvant $c_s \mathbf{v}_s$ dans le film liquide se décompose en un terme d'advection (transport dû à la vitesse de l'écoulement \mathbf{v}) et un terme de diffusion :

$$c_s \mathbf{v}_s = c_s \mathbf{v} - D\rho \nabla \omega_s \quad (3.23)$$

Le flux de solvant à travers l'interface plane et mobile, de vitesse \mathbf{v}_{evap} et de normale \mathbf{e}_z s'écrit :

$$c_s (\mathbf{v}_s - \mathbf{v}_{evap}) \cdot \mathbf{e}_z = (c_s (\mathbf{v} - \mathbf{v}_{evap}) - D\rho \nabla \omega_s) \cdot \mathbf{e}_z \quad (3.24)$$

Avec les notations précédentes, et en considérant que le solvant est le seul à s'évaporer, la conservation de la masse de solvant à travers l'interface s'écrit :

$$c_s (w - v_{evap}) - D\rho \frac{\partial \omega_s}{\partial z} = \frac{v_{evap}}{\bar{V}_s} \quad (3.25)$$

Le polymère ne s'évapore pas, une analyse similaire nous donne :

$$c_p (w - v_{evap}) - D\rho \frac{\partial \omega_p}{\partial z} = 0 \quad (3.26)$$

En additionnant les equations 3.25 et 3.26, en tenant compte de l'équation 3.12 et du fait que $\omega_s + \omega_p = 1$, il vient :

$$w = \left(\frac{1}{\rho \bar{V}_s} - 1 \right) v_{evap} \quad (3.27)$$

La variation de la masse volumique avec la concentration est négligée sauf dans le terme relatif à la poussée d'Archimède (approximation de Boussinesq) donc $\bar{V}_s = \bar{V}_p$ et $\rho = \frac{1}{\bar{V}_s}$. L'équation 3.27 nous donne la condition à la limite sur la composante w de la vitesse :

$$w = 0 \quad (3.28)$$

En substituant ce résultat dans l'équation 3.25, on obtient la condition limite sur la fraction volumique de solvant en surface libre :

$$-D \frac{\partial \varphi_s}{\partial z} = v_{evap} (1 - \varphi_s) \quad (3.29)$$

3.1.4 Equations adimensionnées

Choix des paramètres d'adimensionnement

L'épaisseur et la viscosité variant au cours du temps les valeurs initiales de ces paramètres sont choisies comme grandeurs de référence. Ainsi l'échelle de longueur caractéristique est l'épaisseur initiale de la cavité e_i et celle de viscosité est la viscosité initiale μ_i . La vitesse de diffusion massique D/e_i est choisie comme échelle de vitesse et le temps de diffusion massique e_i^2/D comme échelle de temps. L'échelle de pression est $\rho_i D^2/e_i^2$.

On introduit aussi une échelle de variation de concentration $\Delta\varphi$. Cet écart est égal au flux de solvant initial à l'interface multiplié par l'épaisseur initiale de la solution. Dans ce cas

$$\Delta\varphi = -\frac{\partial\varphi_s(t=0)}{\partial z}\Big|_{int} e_i = \text{Pe}_{int}(1 - \varphi_s(t=0)), \quad (3.30)$$

avec Pe_{int} le nombre de Péclet d'interface qui est le rapport de la vitesse de descente de l'interface sur la vitesse de diffusion massique D/e_i :

$$\text{Pe}_{int} = \frac{v_{evap}e_i}{D}$$

Les grandeurs adimensionnelles seront dans le paragraphe suivant notées avec une étoile *.

Equations

Avec le choix de grandeurs de référence, le système d'équations 3.18 devient :

$$\begin{cases} \mathbf{div}^* \mathbf{v}^* = 0 \\ \frac{\partial \mathbf{v}^*}{\partial t^*} + (\mathbf{v}^* \cdot \nabla^*) \mathbf{v}^* = -\nabla^* p^* + \text{Sc} \mathbf{div}^* (\mu^* \nabla^* \mathbf{v}^* + \mu^* \nabla^{t*} \mathbf{v}^*) - \frac{\text{RaSc}}{\Delta\varphi} (\varphi_{si} - \varphi_s) \mathbf{e}_z \\ \frac{\partial \varphi_s}{\partial t^*} + (\mathbf{v}^* \cdot \nabla^*) \varphi_s = \nabla^{2*} \varphi_s \end{cases} \quad (3.31)$$

où Sc est le nombre de Schmidt

$$\text{Sc} = \frac{\mu_i}{\rho D}$$

et Ra est le nombre de Rayleigh massique :

$$\text{Ra} = \frac{\rho g \beta' \Delta\varphi e_i^3}{\mu_i D}$$

La viscosité dans dimension μ^* est liée à la fraction volumique de solvant (relation 3.9) Il vient :

$$\begin{cases} \mu^* = \frac{\mu}{\mu_i} = \frac{F(\varphi_s)}{F(\varphi_{si})} & \text{si la viscosité est choisie variable} \\ \mu^* = 1 & \text{si la viscosité est choisie constante.} \end{cases} \quad (3.32)$$

La fonction F est donnée par la relation 3.10.

L'évolution de l'épaisseur au cours du temps s'écrit maintenant :

$$e^*(t) = 1 - \text{Pe}_{\text{int}} t^*$$

Sous leurs formes adimensionnées, les conditions aux limites s'écrivent, aux parois solides (c'est-à-dire en $z^* = 0$ et $x^* = 0, A_i$) :

$$\begin{cases} \mathbf{v}^* = \mathbf{0} \\ \frac{\partial \varphi_s}{\partial \mathbf{n}} = 0 \end{cases} \quad (3.33)$$

et en surface libre, ($z^* = e^*(t)$) :

$$\begin{cases} w^* = 0 \\ \frac{\partial u^*}{\partial z^*} = -\frac{1}{\mu^*} \frac{\text{Ma}}{\Delta \varphi} \frac{\partial \varphi_s}{\partial x^*} \\ \frac{\partial \varphi_s}{\partial z^*} = -\text{Pe}_{\text{int}} (1 - \varphi_s) \end{cases} \quad (3.34)$$

avec A_i le facteur de forme initial de la cavité et Ma le nombre de Marangoni solutal :

$$\text{Ma} = -\frac{\gamma \Delta \varphi e_i}{\mu_i D} \quad (3.35)$$

Dans la suite, par commodité, les « * » seront omises. Dans le cadre des hypothèses retenues, le problème solutal est donc défini par le quintuplet $\mathcal{Q} = (\varphi_{si}, \text{Pe}_{\text{int}}, \text{Sc}, \text{Ma}, \text{Ra})$.

3.2 Méthodes numériques

Le code de calcul utilisé dans le cadre de l'étude de la convection d'origine solutale utilise une formulation en volumes finis. Il a été développé à l'origine par E. Chénier (Laboratoire MSME de Marne-la-Vallée, Paris-Est). Les méthodes numériques, et notamment l'utilisation d'une formulation Arbitrary Lagrangian-Eulerian (ALE) [25], sont brièvement décrites ici. Une étape de validation est présentée en toute fin de section.

Le domaine de calcul est donné en figure 3.2. Le volume de fluide est défini par $V(t) =]0; A_i[\times]0; e(t)[$. On note $\Gamma(t)$ les frontières associées aux parois solides et $\mathcal{S}(t)$ la surface libre. On a $\partial V(t) = \mathcal{S}(t) \cup \Gamma(t)$.

On rappelle ici le système d'équations établi dans la section précédente. Pour $(x, z) \in V(t)$, on a :

$$\begin{cases} \mathbf{div} \mathbf{v} = 0 \\ \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} = -\nabla p + \text{Sc} \mathbf{div} (\mu \nabla \mathbf{v} + \mu \nabla^T \mathbf{v}) - \frac{\text{RaSc}}{\Delta \varphi} (\varphi_{si} - \varphi_s) \mathbf{e}_z \\ \frac{\partial \varphi_s}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) \varphi_s = \nabla^2 \varphi_s \end{cases} \quad (3.36)$$

Les conditions aux limites, aux parois solides et en surface libre, sont respectivement

$$\begin{cases} \mathbf{v} = \mathbf{0} \\ \frac{\partial \varphi_s}{\partial \mathbf{n}} = 0 \end{cases} \quad \forall (x, z) \in \Gamma(t) \quad \text{et} \quad \begin{cases} \frac{\partial u}{\partial z} = f(x, z) \\ w = 0 \\ \frac{\partial \varphi_s}{\partial z} = g(x, z) \end{cases} \quad \forall (x, z) \in \mathcal{S}(t) \quad (3.37)$$

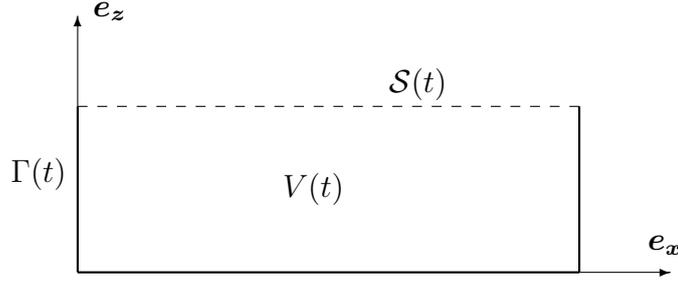


Figure 3.2 – Domaine de calcul

Les conditions aux limites portant sur la vitesse horizontale et sur le flux d'évaporation en surface libre s'écrivent comme des fonctions de l'espace notées $f(x, z)$ et $g(x, z)$. L'originalité par rapport au problème thermique est la variation de l'épaisseur au cours du temps et la prise en compte d'une viscosité variable.

3.2.1 Méthode

Le volume de fluide se déforme au cours du temps. La vitesse de l'interface est notée $\hat{\mathbf{v}}$. Une méthode ALE est utilisée pour tenir compte de la mobilité de l'interface. La résolution des équations 3.36 se fait dans le système de coordonnées liées au repère mobile. Des bilans de flux sur les volumes élémentaires qui composent le domaine sont effectués. Une méthode à pas fractionnaires (voir par exemple [21, 38, 63]) est utilisée pour le découplage vitesse/pression.

On rappelle que $\mathbf{v} = u \mathbf{e}_x + w \mathbf{e}_z$ est le vecteur vitesse du mélange et p représente la différence de pression par rapport à la pression hydrostatique. La concentration en solvant est déterminée par la fraction volumique φ_s .

Formulation ALE

La formulation ALE permet d'avoir dans le même formalisme une description Lagrangienne ou Eulerienne du mouvement.

La vitesse $\hat{\mathbf{v}}$ du repère mobile est connue. Au fond de la cavité ($z = 0$) cette vitesse est nulle $\hat{\mathbf{v}} = \mathbf{0}$. En surface libre ($z = e(t)$), elle est égale à la vitesse d'évaporation $\hat{\mathbf{v}} = v_{evap} \mathbf{e}_z$. On choisit une loi linéaire pour décrire la variation de $\hat{\mathbf{v}}$ avec z :

$$\hat{\mathbf{v}}(z) = \frac{v_{evap}}{e} z \mathbf{e}_z \quad (3.38)$$

Le référentiel d'étude est en mouvement à la vitesse $\hat{\mathbf{v}}$! En posant $\mathbf{c} = \mathbf{v} - \hat{\mathbf{v}}$, avec les conventions $V = V(t)$ et $\partial V = \partial V(t)$, la forme intégrale ALE des équations de

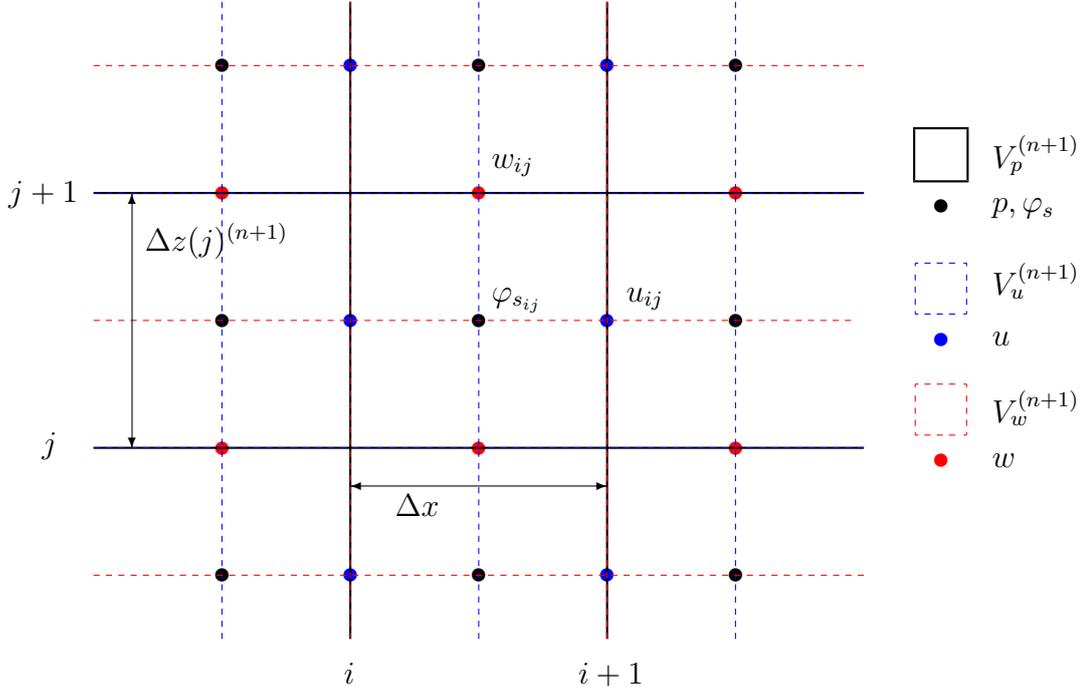


Figure 3.3 – Maillage décalé. $i = 1, \dots, (N_x + 1)$ et $j = 1, \dots, (N_z + 1)$

Une discrétisation implicite d'ordre 2 est utilisé pour exprimer les dérivées temporelle. Les termes convectifs sont extrapolés par un schéma d'Adams-Bashforth dont la convention suivante est adoptée pour noter l'extrapolation de la quantité X :

$$[X]^{(n+1)} = 2X^{(n)} - X^{(n-1)} \quad (3.40)$$

Le terme $\mu \nabla^T \mathbf{v}$ est explicité tandis que tous les termes restant (maillage, termes diffusifs et poussée d'Archimède) sont implicites.

Résolution

Equations discrètes

Des bilans de flux sont effectués sur chaque maille élémentaire ce qui permet d'écrire la forme discrète des équations 3.39. Les conservations de masse (totale et de solvant) et de quantité de mouvement s'écrivent :

Masse

$$\frac{3}{2\Delta t} V_p^{(n+1)} - \frac{2}{\Delta t} V_p^{(n)} + \frac{1}{2\Delta t} V_p^{(n-1)} = - \sum_{f \in f_p^{(n+1)}} S_f \mathbf{c}^{(n+1)} \cdot \mathbf{n}^{(n+1)} \quad (3.41)$$

Masse de solvant

$$\frac{3}{2\Delta t} V_p^{(n+1)} \varphi_s^{(n+1)} - \frac{2}{\Delta t} V_p^{(n)} \varphi_s^{(n)} + \frac{1}{2\Delta t} V_p^{(n-1)} \varphi_s^{(n-1)} = - \sum_{f \in [f_p]^{(n+1)}} S_f [\varphi_s \mathbf{c} \cdot \mathbf{n}]^{(n+1)} + V_p^{(n+1)} \nabla^2 \varphi_s^{(n+1)} \quad (3.42)$$

Quantité de mouvement

$$\begin{aligned} \frac{3}{2\Delta t} V_v^{(n+1)} \mathbf{v}^{(n+1)} - \frac{2}{\Delta t} V_v^{(n)} \mathbf{v}^{(n)} + \frac{1}{2\Delta t} V_v^{(n-1)} \mathbf{v}^{(n-1)} = & - \sum_{f \in [f_v]^{(n+1)}} S_f [\mathbf{v} \mathbf{c} \cdot \mathbf{n}]^{(n+1)} \\ & - \sum_{f \in [f_v]^{(n+1)}} S_f p^{(n+1)} \mathbf{n}^{(n+1)} + \sum_{f \in [f_v]^{(n+1)}} S_f \text{Sc} \mu^{(n+1)} \nabla \mathbf{v}^{(n+1)} \cdot \mathbf{n}^{(n+1)} \\ & + \text{Sc} \sum_{f \in [f_v]^{(n+1)}} S_f [\mu \nabla^T \mathbf{v} \cdot \mathbf{n}]^{(n+1)} - V_v^{(n+1)} \frac{\text{RaSc}}{\Delta \varphi} (\varphi_{si} - \varphi_s^{(n+1)}) \mathbf{e}_z \end{aligned} \quad (3.43)$$

Résolution temporelle

On détaille ici l'avancée temporelle. On résout dans un premier temps l'équation portant sur la fraction volumique. Le couplage avec le champ de vitesse s'effectue ensuite via la poussée d'Archimède et/ou la condition de Marangoni. Une vision schématique de la résolution est présentée en figure 3.4

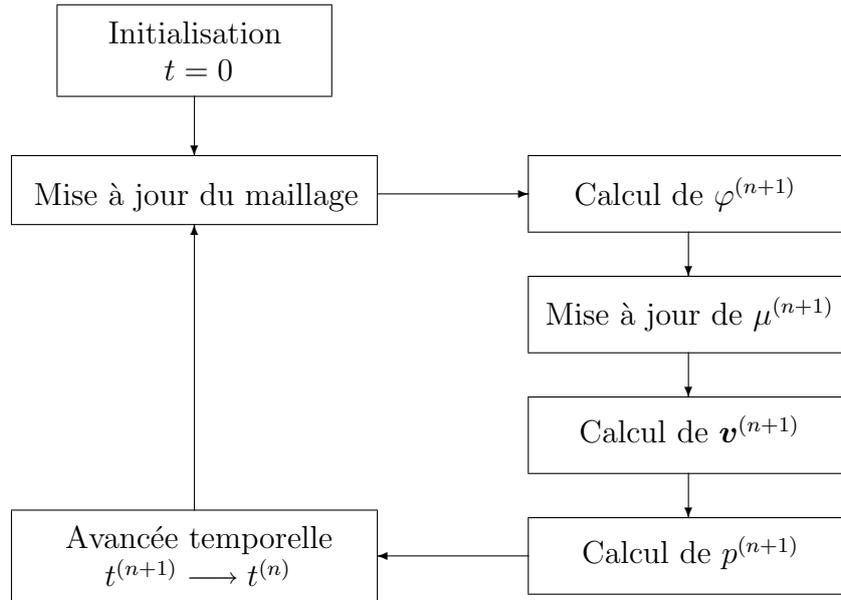


Figure 3.4 – Schéma de l'algorithme utilisé.

Masse de solvant

En faisant apparaître un second membre f_φ , l'équation 3.42 peut s'écrire :

$$\left(V_p^{(n+1)} \nabla^2 - \frac{3}{2\Delta t} V_p^{(n+1)} \right) \varphi_s^{(n+1)} = f_\varphi \quad (3.44)$$

avec

$$f_\varphi = \sum_{f \in [f_p]^{(n+1)}} S_f [\varphi_s \mathbf{c} \cdot \mathbf{n}]^{(n+1)} - \frac{2}{\Delta t} V_p^{(n)} \varphi_s^{(n)} + \frac{1}{2\Delta t} V_p^{(n-1)} \varphi_s^{(n-1)} \quad (3.45)$$

L'inversion de l'opérateur de Helmholtz qui apparaît ici est faite en introduisant les conditions aux limites. On rappelle qu'aux parois solides et en surface libre, on a respectivement

$$\frac{\partial \varphi_s^{(n+1)}}{\partial \mathbf{n}} = 0 \quad \forall (x, z) \in \partial V^{(n+1)} \setminus \mathcal{S}^{(n+1)} \quad (3.46)$$

et

$$\frac{\partial \varphi_s^{(n+1)}}{\partial z} = g(x, z) \quad \forall (x, z) \in \mathcal{S}^{(n+1)} \quad (3.47)$$

A la fin de cette étape la fraction volumique de solvant au temps $(n+1)$, $\varphi_s^{(n+1)}$, est connue.

Remarque

Les problèmes de Helmholtz qui apparaissent (équation 3.45) pour les différentes variables (sauf pression) sont résolus avec une méthode ADI incrémentale [56]. Pour le problème de Poisson associé à la pression (équation 3.56) on utilise soit le bi-gradient conjugué stabilisé (BiCGStab) préconditionné par une factorisation LU incomplète (pour des maillages importants, $N_x \times N_z > 10^5$) soit une méthode de Crout sur des maillages damiers.

Quantité de mouvement

L'équation de quantité de mouvement est résolue. Dans l'optique du découplage vitesse/pression on fait apparaître un champ de vitesse intermédiaire noté $\mathbf{v}^{(*)} = u^{(*)} \mathbf{e}_x + w^{(*)} \mathbf{e}_z$ ainsi qu'un terme de pression exprimé au temps (n) . L'équation 3.43 se reformule :

$$\begin{aligned} \frac{3}{2\Delta t} V_v^{(n+1)} \mathbf{v}^{(n+1)} + \boxed{\frac{3}{2\Delta t} (V_v^{(n+1)} \mathbf{v}^{(*)} - V_v^{(n+1)} \mathbf{v}^{(*)})} &= - \sum_{f \in f_v^{(n+1)}} S_f p^{(n+1)} \mathbf{n}^{(n+1)} \\ - \boxed{\sum_{f \in f_v^{(n)}} S_f (p^{(n)} - p^{(n)}) \mathbf{n}^{(n)}} + \text{Sc} \sum_{f \in f_v^{(n+1)}} S_f \mu^{(n+1)} \nabla \mathbf{v}^{(n+1)} \cdot \mathbf{n}^{(n+1)} \\ + \boxed{\text{Sc} \sum_{f \in f_v^{(n+1)}} S_f \mu^{(n+1)} \nabla (\mathbf{v}^{(*)} - \mathbf{v}^{(*)}) \cdot \mathbf{n}^{(n+1)}} + \mathbf{f}_v \end{aligned} \quad (3.48)$$

avec

$$\begin{aligned} \mathbf{f}_v &= \frac{2}{\Delta t} V_v^{(n)} \mathbf{v}^{(n)} - \frac{1}{2\Delta t} V_v^{(n-1)} \mathbf{v}^{(n-1)} - \sum_{f \in [f_v]^{(n+1)}} S_f [\mathbf{v} \mathbf{c} \cdot \mathbf{n}]^{(n+1)} \\ &+ \text{Sc} \sum_{f \in [f_v]^{(n+1)}} S_f [\mu \nabla^T \mathbf{v} \cdot \mathbf{n}]^{(n+1)} - V_v^{(n+1)} \frac{\text{RaSc}}{\Delta \varphi} (\varphi_{si} - \varphi_s^{(n+1)}) \mathbf{e}_z \end{aligned} \quad (3.49)$$

Les termes encadrés de l'équation 3.48 sont nuls par construction. Le champ de vitesse intermédiaire $\mathbf{v}^{(*)}$ vérifie les conditions aux limites. Cette équation se décompose en la somme de deux équations.

$$\frac{3}{2\Delta t} V_v^{(n+1)} \mathbf{v}^{(*)} = - \sum_{f \in f_v^{(n)}} S_f p^{(n)} \mathbf{n}^{(n)} + \text{Sc} \sum_{f \in f_v^{(n+1)}} S_f \mu^{(n+1)} \nabla \mathbf{v}^{(*)} \cdot \mathbf{n}^{(n+1)} + \mathbf{f}_v \quad (3.50)$$

et

$$\begin{aligned} \frac{3}{2\Delta t} V_v^{(n+1)} \mathbf{v}^{(n+1)} - \frac{3}{2\Delta t} V_v^{(n+1)} \mathbf{v}^{(*)} &= - \sum_{f \in f_v^{(n+1)}} S_f p^{(n+1)} \mathbf{n}^{(n+1)} + \sum_{f \in f_v^{(n)}} S_f p^{(n)} \mathbf{n}^{(n)} \\ &+ \text{Sc} \sum_{f \in f_v^{(n+1)}} S_f \mu^{(n+1)} \nabla \mathbf{v}^{(n+1)} \cdot \mathbf{n}^{(n+1)} \\ &- \text{Sc} \sum_{f \in f_v^{(n+1)}} S_f \mu^{(n+1)} \nabla \mathbf{v}^{(*)} \cdot \mathbf{n}^{(n+1)} \end{aligned} \quad (3.51)$$

Les étapes de la résolution sont les suivantes :

1. La décomposition de Hödge est utilisée pour décomposer le champ $\mathbf{v}^{(*)}$ en la somme d'un champ solénoïdal (à divergence nulle) et d'un champ irrotationnel :

$$\mathbf{v}^{(*)} = \mathbf{v}^{(n+1)} + \frac{2\Delta t}{3} \nabla \phi^{(n+1)} \quad (3.52)$$

On calcule ses conditions aux limites et on résoud le problème de diffusion 3.50 pour obtenir $\mathbf{v}^{(*)}$. Le second membre est connu.

2. On résoud l'équation sur la composante irrotationnelle de la vitesse ($\nabla \phi$) qui s'obtient en injectant la décomposition 3.52 dans la conservation de la masse 3.41.
3. On corrige la vitesse et on obtient \mathbf{v} au temps $(n+1)$.
4. On résoud l'équation 3.51 pour obtenir la pression p au temps $(n+1)$.

En comptant l'équation sur la conservation de la masse de solvant, ces opérations font intervenir cinq systèmes linéaires à inverser : trois opérateurs de Helmholtz pour φ_s , $\mathbf{v}^{(*)} \cdot \mathbf{e}_x$ et $\mathbf{v}^{(*)} \cdot \mathbf{e}_z$ (u et w), et deux opérateurs de Poisson pour ϕ et p .

A partir décomposition de Hödge, on calcule les conditions aux limites associées à $\mathbf{v}^{(*)}$.

- Pour la composante verticale de la vitesse $\mathbf{v}^{(*)} \cdot \mathbf{e}_z$:

$$\begin{aligned} \mathbf{v}^{(*)} \cdot \mathbf{e}_z &= \left(\mathbf{v}^{(n+1)} + \frac{2\Delta t}{3} \nabla \phi^{(n+1)} \right) \cdot \mathbf{e}_z \\ &= 0 + \frac{2\Delta t}{3} (\nabla \phi^{(n)} + \mathcal{O}(\Delta t)) \cdot \mathbf{e}_z \\ &= \frac{2\Delta t}{3} \nabla \phi^{(n)} \cdot \mathbf{e}_z + \mathcal{O}(\Delta t^2) \\ &\approx \frac{2\Delta t}{3} \nabla \phi^{(n)} \cdot \mathbf{e}_z \end{aligned} \quad \forall (x, z) \in \partial V^{(n+1)} \quad (3.53)$$

- Pour la composante horizontale de la vitesse $\mathbf{v}^{(*)} \cdot \mathbf{e}_x$, on obtient :
- Aux parois solides, de la même manière que pour $\mathbf{v}^{(*)} \cdot \mathbf{e}_z$ il vient :

$$\mathbf{v}^{(*)} \cdot \mathbf{e}_x \approx \frac{2\Delta t}{3} \nabla \phi^{(n)} \cdot \mathbf{e}_x \quad \forall (x, z) \in \Gamma^{(n+1)} \quad (3.54)$$

- En surface libre :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mathbf{v}^{(*)} \cdot \mathbf{e}_x}{\partial \mathbf{e}_z} &= \frac{\partial}{\partial \mathbf{e}_z} \left(\left(\mathbf{v}^{(n+1)} + \frac{2\Delta t}{3} \nabla \phi^{(n+1)} \right) \cdot \mathbf{e}_x \right) \\ &= f(x, z) + \frac{2\Delta t}{3} \frac{\partial}{\partial \mathbf{e}_z} \left((\nabla \phi^{(n)} + \mathcal{O}(\Delta t)) \cdot \mathbf{e}_x \right) \\ &= f(x, z) + \frac{2\Delta t}{3} \frac{\partial}{\partial \mathbf{e}_z} \frac{\partial \phi^{(n)}}{\partial \mathbf{e}_x} + \mathcal{O}(\Delta t^2) \\ &\approx f(x, z) + \frac{2\Delta t}{3} \frac{\partial}{\partial \mathbf{e}_x} \frac{\partial \phi^{(n)}}{\partial \mathbf{e}_z} \end{aligned} \quad \forall (x, z) \in \mathcal{S}^{(n+1)} \quad (3.55)$$

La conservation de la masse (équation 3.41) doit être vérifiée. En utilisant la décomposition de Hödger (équation 3.52), on obtient une équation sur la composante irrotationnelle de la vitesse $\nabla \phi$.

$$\Delta t \sum_{f \in f_p^{(n+1)}} S_f \nabla \phi^{(n+1)} \cdot \mathbf{n}^{(n+1)} = f_\phi \quad (3.56)$$

avec

$$f_\phi = \frac{3}{2\Delta t} V_p^{(n+1)} - \frac{2}{\Delta t} V_p^{(n)} + \frac{1}{2\Delta t} V_p^{(n-1)} + \sum_{f \in f_p^{(n+1)}} S_f \left(\mathbf{v}^{(*)} - \hat{\mathbf{v}}^{(n+1)} \right) \cdot \mathbf{n}^{(n+1)} \quad (3.57)$$

Les équations 3.53 et 3.54 nous donnent $\mathbf{v}^{(*)} \cdot \mathbf{n} \simeq \frac{2\Delta t}{3} \nabla \phi^{(n)} \cdot \mathbf{n}$. La condition aux limites sur $\nabla \phi^{(n+1)}$ s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \mathbf{v}^{(n+1)} \cdot \mathbf{n} &= \left(\mathbf{v}^{(*)} - \frac{2\Delta t}{3} \nabla \phi^{(n+1)} \right) \cdot \mathbf{n} \\ 0 &\simeq \left(\frac{2\Delta t}{3} \nabla \phi^{(n)} - \frac{2\Delta t}{3} \nabla \phi^{(n+1)} \right) \cdot \mathbf{n} \end{aligned} \quad (3.58)$$

soit :

$$\nabla \phi^{(n+1)} \cdot \mathbf{n} \simeq \nabla \phi^{(n)} \cdot \mathbf{n} \quad (3.59)$$

En choisissant $\nabla \phi^{(0)} \cdot \mathbf{n} = 0$ comme condition initiale, les conditions aux limites pour les champs $\mathbf{v}^{(*)}$ et $\nabla \phi^{(n+1)} \cdot \mathbf{n}$ sont finalement :

$$\left\{ \begin{array}{l} u^{(*)} = \begin{cases} 0 & \text{en } x = 0 \text{ et } x = A_i \\ \frac{2\Delta t}{3} \nabla \phi^{(n)} \cdot \mathbf{e}_x & \text{en } z = 0 \text{ et } z = e(t) \end{cases} \\ w^{(*)} = \begin{cases} \frac{2\Delta t}{3} \nabla \phi^{(n)} \cdot \mathbf{e}_z & \text{en } x = 0 \text{ et } x = A_i \\ 0 & \text{en } z = 0 \text{ et } z = e(t) \end{cases} \\ \frac{\partial u^{(*)}}{\partial \mathbf{e}_z} = f(x, z) \quad \forall (x, z) \in \mathcal{S}^{(n+1)} \end{array} \right. \quad (3.60)$$

et

$$\nabla \phi^{(n+1)} \cdot \mathbf{n} = 0 \quad \forall (x, z) \in \partial V^{(n+1)} \quad (3.61)$$

L'adhérence est vérifiée pour $\mathbf{v}^{(*)}$ sur les composantes normales, en revanche, il y a une correction sur les composantes tangentielles. On peut aussi noter que les conditions aux limites pour la vitesse $\mathbf{v}^{(*)}$ sont bien du second ordre tandis que celles engendrées pour ϕ proviennent d'un développement au premier ordre.

Avec ces conditions aux limites, les équations 3.50 et 3.56 sont résolues, ce qui permet d'obtenir la vitesse au temps $(n+1)$. En utilisant le théorème du gradient, l'équation discrète s'écrit :

$$V_{\mathbf{v}}^{(n+1)} \mathbf{v}^{(n+1)} = V_{\mathbf{v}}^{(n+1)} \mathbf{v}^{(*)} - \frac{2\Delta t}{3} \sum_{f \in f_{\mathbf{v}}^{(n+1)}} S_f \phi^{(n+1)} \mathbf{n}^{(n+1)} \quad (3.62)$$

Reste à corriger le terme de pression. En injectant la relation 3.62 dans l'équation 3.51, la pression $p^{(n+1)}$ satisfait la relation :

$$\begin{aligned} \sum_{f \in f_{\mathbf{v}}^{(n+1)}} S_f p^{(n+1)} \mathbf{n}^{(n+1)} &= \sum_{f \in f_{\mathbf{v}}^{(n+1)}} S_f \phi^{(n+1)} \mathbf{n}^{(n+1)} + \sum_{f \in f_{\mathbf{v}}^{(n)}} S_f p^{(n)} \mathbf{n}^{(n)} \\ &\quad - \text{Sc} \frac{2\Delta t}{3} \sum_{f \in f_{\mathbf{v}}^{(n+1)}} S_f \mu^{(n+1)} \nabla (\nabla \phi^{(n+1)}) \cdot \mathbf{n}^{(n+1)} \end{aligned} \quad (3.63)$$

Le terme sur la pression au temps (n) est approximé au premier ordre en temps. On obtient finalement :

$$\sum_{f \in f_{\mathbf{v}}^{(n+1)}} S_f p^{(n+1)} \mathbf{n}^{(n+1)} = \sum_{f \in f_{\mathbf{v}}^{(n+1)}} S_f \phi^{(n+1)} \mathbf{n}^{(n+1)} + \sum_{f \in f_{\mathbf{v}}^{(n+1)}} S_f p^{(n)} \mathbf{n}^{(n+1)} + \mathcal{O}(\Delta t) \quad (3.64)$$

Cette approximation permet d'économiser l'inversion d'un système linéaire mais nous fait commettre une erreur en $\mathcal{O}(\Delta t)$ sur la pression, qui s'écrit finalement :

$$p^{(n+1)} = \phi^{(n+1)} + p^{(n)} \quad (3.65)$$

3.2.2 Validation par une solution analytique

La comparaison avec une solution analytique (indice « a ») est faite dans la configuration suivante. Le facteur de forme initial de la cavité est $A_i = 1$. La solution test « essaie » de refléter une solution physique, tout du moins pour l'application des conditions aux limites. Le champ de vitesse est incompressible et il vérifie l'adhérence aux parois. Le champ de concentration est choisi de façon à ce que l'imperméabilité soit vérifiée en $z = 0$ et $x = 0, A_i$. Un flux est imposé en $z = e(t)$. Le nombre de mailles dans les directions \mathbf{e}_x et \mathbf{e}_z est égal : $N_x = N_z = N$.

Le champ de vitesse $\mathbf{v}_a = u_a \mathbf{e}_x + w_a \mathbf{e}_z$ est défini pour $(x, z) \in V(t)$ par :

$$\begin{cases} u_a(x, z, t) = \frac{\pi}{e(t)} \left(-\frac{3}{2} \sin\left(\frac{3\pi}{2e(t)}z\right) + \frac{1}{2} \sin\left(\frac{\pi}{2e(t)}z\right) \right) \sin^2(\pi x) \cos(\pi t) \\ w_a(x, z, t) = \left(\cos\left(\frac{\pi}{2e(t)}z\right) - \cos\left(\frac{3\pi}{2e(t)}z\right) \right) \pi \sin(2\pi x) \cos(\pi t) \end{cases} \quad (3.66)$$

Les évolutions de la pression p_a et de la fraction volumique de solvant φ_{sa} sont données, $\forall(x, z) \in V(t)$, par

$$p_a(x, z, t) = \cos(2\pi x) \cos\left(2\pi \frac{z}{e(t)}\right) \cos(\pi t) \quad (3.67)$$

et

$$\varphi_{sa}(x, z, t) = 1 - \frac{\exp(\text{Pe}_{\text{int}} e(t) z)}{\text{Pe}_{\text{int}}} (3z^2 - 2z^3) \cos(2\pi x) \cos(0.1\pi t) \quad (3.68)$$

Un terme de forçage \mathbf{f}_a est calculé analytiquement en injectant la solution analytique dans les équations 3.36.

On cherche ensuite les solutions (\mathbf{v}, φ_s) du système 3.36 auquel est ajouté le terme de forçage \mathbf{f}_a . L'initialisation est faite avec la solution analytique ($\mathbf{v}(t=0) = \mathbf{v}_a(t=0)$ et $\varphi_{sa}(t=0) = \varphi_s(t=0)$). Les conditions aux limites imposées sont :

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathbf{v} = \mathbf{0} \\ \frac{\partial \varphi_s}{\partial \mathbf{n}} = 0 \end{array} \right. \quad \forall(x, z) \in \Gamma(t) \quad \text{et} \quad \left\{ \begin{array}{l} \mathbf{v} = \mathbf{v}_a \\ \frac{\partial \varphi_s}{\partial z} = \frac{\partial \varphi_{sa}}{\partial z} \end{array} \right. \quad \forall(x, z) \in \mathcal{S}(t) \quad (3.69)$$

La viscosité est imposée, de la forme :

$$\mu(x, z) = \exp(x + 2z) \quad \forall(x, z) \in V(t) \quad (3.70)$$

Calcul de l'erreur commise

On regardera dans la suite l'erreur relative en norme L^2 commise par rapport à la solution analytique. Pour une variable X , l'erreur est donnée par la relation :

$$\text{err}(X) = \left(\frac{\sum_i (X_a(i) - X(i))^2}{\sum_i X_a(i)^2} \right)^{\frac{1}{2}} \quad \text{avec } i = 1, \dots, N^2 \quad (3.71)$$

Vérification des ordres temporel et spatial de la méthode

La solution analytique n'admet pas de solution stationnaire, on compare donc l'erreur commise à temps fixé. La gamme de pas de temps parcourue va de $\Delta t = 6.25 \times 10^{-5}$ à $\Delta t = 8 \times 10^{-3}$. Le maillage est régulier ($C_z = 1$) et le nombre de mailles dans chaque direction s'étend de $N = 10$ à $N = 320$.

La poussée d'archimède n'est pas prise en compte dans le test numérique ($\text{Ra} = 0$). Les autres paramètres d'adimensionnement sont choisis égaux à 1 excepté le nombre de Péclet d'interface Pe_{int} (vitesse de l'interface).

Les figures 3.5 et 3.6 présentent pour $\text{Pe}_{\text{int}} = 4$ et $\text{Pe}_{\text{int}} = 0.01$ les ordres de consistance de l'approximation pour les différentes variables. L'erreur est relevée pour $t = 0.2$

On retrouve des évolution des erreurs temporelle et spatiale du second ordre pour l'ensemble des variables.

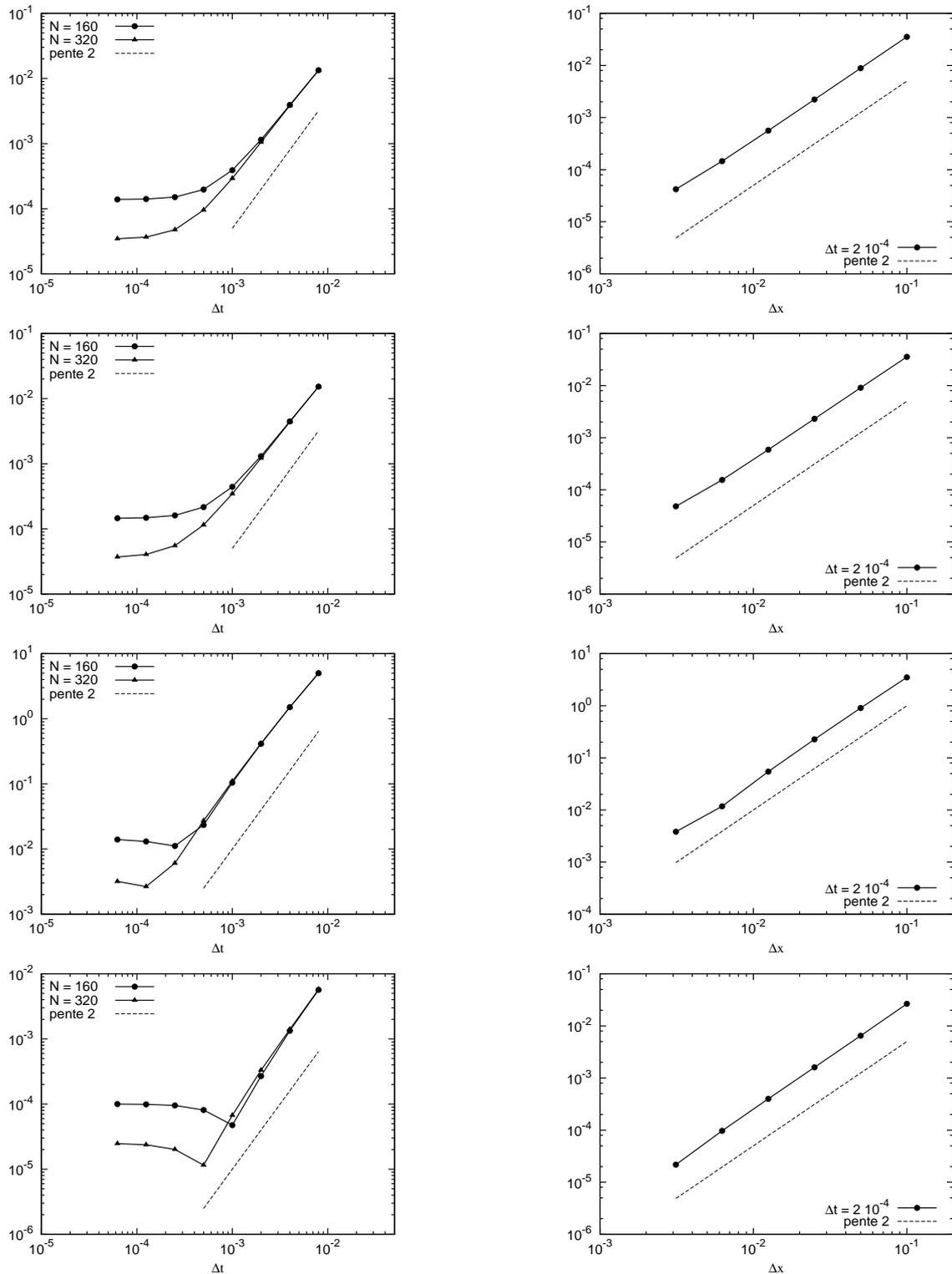


Figure 3.5 – Evolution en échelle logarithmique des erreurs relatives spatiale (colonne de gauche) et temporelle (colonne de droite). De haut en bas pour les variables u , w , p et φ_s . ($A_i = 1$, $t = 0.2$ et $Pe_{\text{int}} = 4$)

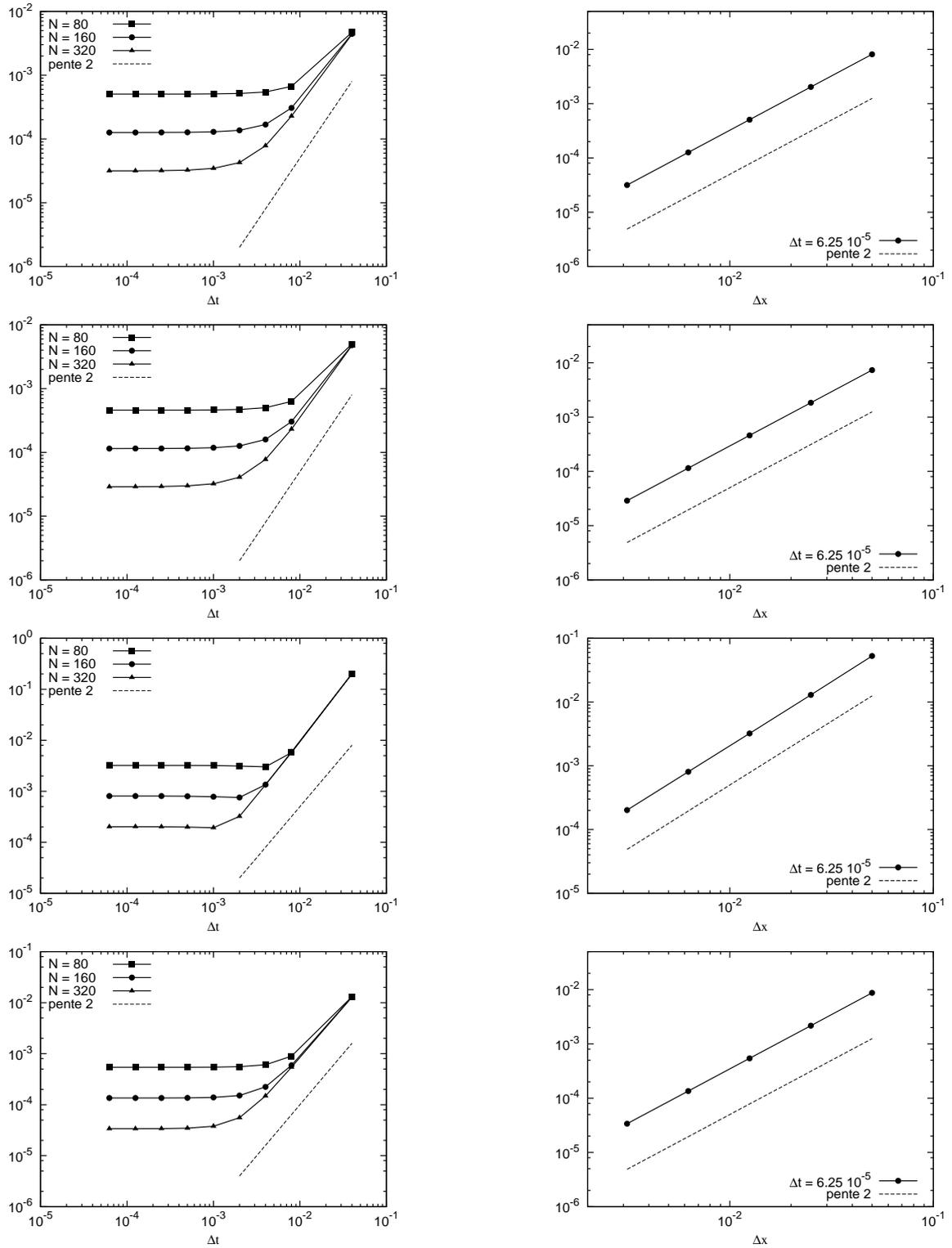


Figure 3.6 – Evolution en échelle logarithmique des erreurs relatives spatiale (colonne de gauche) et temporelle (colonne de droite). De haut en bas pour les variables u , w , p et φ_s . ($A_i = 1$, $t = 0.2$ et $Pe_{\text{int}} = 0.01$)

Chapitre 4

Convection solutale transitoire et seuils de stabilité

L'étude de la convection solutale a été développée d'une part dans un cadre général, en analysant les seuils d'apparition de la convection en fonction du quintuplet $\mathcal{Q} = (\varphi_{si}, Pe_{int}, Sc, Ma, Ra)$ des paramètres adimensionnés caractérisant le système. D'autre part, nous nous sommes plus particulièrement intéressés à deux cas tests qui correspondent à des configurations expérimentales étudiées antérieurement, et sur lesquelles nous conduirons en fin de ce travail une étude comparative des phénomènes thermiques et solutaux. Ces cas tests sont définis dans le tableau 4.1. Ils correspondent aux mêmes épaisseurs et viscosités que celles utilisées dans l'étude du modèle thermique.

Cas n°	e_i (mm)	μ_i (mPa.s)	φ_{si}	Sc	Ra	Ma	Pe_{int}
1	1	0.98	0.994	1.13×10^4	9.18×10^4	9.9×10^5	3
2	8	21.5	0.953	2.31×10^5	1.3×10^8	2.2×10^7	24

Tableau 4.1 – Tableau récapitulatifs des cas tests correspondant à l'expérience.

Comme dans le problème thermique présenté dans la première partie de ce travail, le problème est transitoire et l'étude de stabilité dépend des conditions initiales. On s'intéresse donc tout d'abord au choix du critère adopté pour caractériser la présence de la convection et à la sensibilité des résultats à l'amplitude de la perturbation initiale. Après une brève présentation de l'état de base diffusif transitoire en section 4.1, cette étude préliminaire fait l'objet de la section 4.2. On se penche ensuite sur le problème général des seuils de transition en fonction du quintuplet $\mathcal{Q} = (\varphi_{si}, Pe_{int}, Sc, Ma, Ra)$ (section 4.3), en étudiant le problème de RB seul ou de BM seul. Un accent particulier est mis sur la comparaison du problème à viscosité constante ou variable.

En variables sans dimension, on rappelle (relation 3.32) qu'une viscosité constante correspond à : $\mu(x, z, t) = 1$. En viscosité variable, on a : $\mu(x, z, t) = F(\varphi_s(x, z, t))/F(\varphi_{si})$. (La fonction F est définie en page 78.)

Dans l'espace des nombres sans dimension nous avons cinq paramètres de contrôle. Comme il n'est pas envisageable de les faire tous varier en même temps nous nous ramenons à des problèmes plus « simples ». On choisit de regarder de manière indépendante l'effet Marangoni et la poussée d'Archimède (on a donc soit $Ma = 0$ soit $Ra = 0$). Le nombre de Schmidt est fixé, $Sc = 10$. Nous montrons en section 4.3 sa faible influence

sur les seuils de transition. Le nombre de Péclet tient compte de la vitesse de l'interface. Physiquement, et pour une solution de PIB/Toluène avec flux imposé, le nombre de Péclet croît avec l'épaisseur initiale de la solution. La fraction volumique de solvant initiale caractérise la teneur en solvant de la solution. Les paramètres importants sont donc Ma (ou Ra), Pe_{int} et φ_{si} .

Nous revenons ensuite à une analyse dans le plan des paramètres expérimentaux, de façon à caractériser les phénomènes dominants selon les différentes configurations expérimentales. Ceci nous permet d'aborder dans une dernière section une synthèse des deux grandes parties de ce manuscrit et de comparer sur nos cas tests les temps de déclenchement et de disparition ainsi que l'amplitude des vitesses générées par les phénomènes thermiques et solutaux.

4.1 Problème diffusif

Le problème ne possédant pas de solution stationnaire, l'état diffusif est dans un premier temps étudié. Les équations données dans la section 3.1 sont résolues en annulant le champ de vitesse. L'évolution du champ de concentration est alors mono dimensionnelle dans la direction verticale. Les paramètres utilisés sont ceux des cas tests définis dans le tableau 4.1. Le temps est ici exprimé en secondes pour que des comparaisons soit possibles entre les deux cas simulés.

4.1.1 Evolution de la concentration pour deux situations modèles

L'évaporation du solvant modifie la concentration de la solution à proximité de l'interface. Le champ initial homogène est alors perturbé et la perturbation est diffusée dans l'épaisseur du liquide. L'évolution temporelle de la fraction volumique de solvant φ_s à la surface du film ($z = e(t)$) et au fond de la cavité est présentée en figure 4.1 pour les deux cas tests.

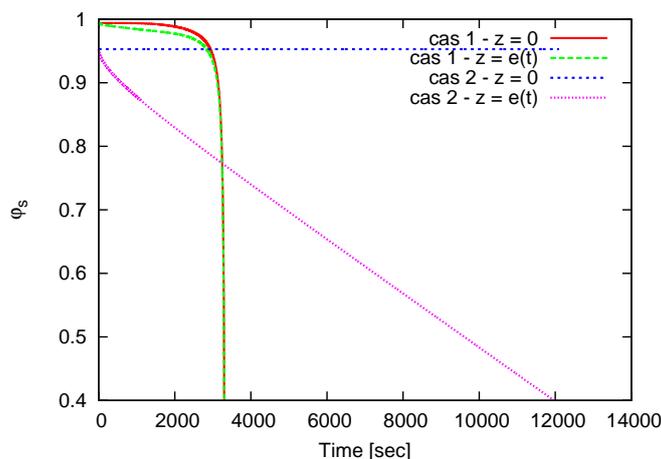


Figure 4.1 – Evolution temporelle de φ_s pour les différents cas tests.

Pour le cas n° 1, on constate que l'écart maximal de concentration dans le film liquide reste faible. A l'opposé, dans le cas n° 2, la fraction volumique de solvant atteint la valeur

limite de 40% en surface libre (i.e. la limite de validité de notre modèle) alors que celle du fond n'a pas encore eu le temps de varier. Le milieu peut alors être considéré comme semi-infini.

4.1.2 Modèle de milieu semi-infini

Equations dans le repère de l'interface

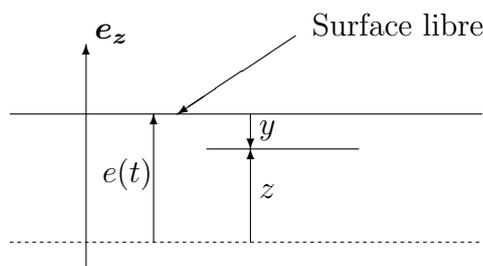


Figure 4.2 – Schéma milieu semi-infini

Aux temps courts, la concentration au fond de la coupelle ($z = 0$) n'a pas le temps de varier. On peut alors supposer que tout se passe comme si l'épaisseur de la solution était infinie. Si l'on se place dans le repère de l'interface, on obtient les équations ci-dessous. On introduit y , la distance à l'interface (cf. figure 4.2) : $y = e(t) - z$, après changement de variable, il vient :

$$\frac{\partial \varphi_s}{\partial t} - \text{Pe}_{\text{int}} \frac{\partial \varphi_s}{\partial y} = \frac{\partial^2 \varphi_s}{\partial y^2} \quad (4.1)$$

avec comme condition initiale :

$$\varphi_s(y, t = 0) = \varphi_{si} \quad (4.2)$$

et pour condition aux limites :

$$\frac{\partial \varphi_s}{\partial y} = \text{Pe}_{\text{int}} (1 - \varphi_s) \quad \text{en } y = 0 \quad (4.3)$$

et

$$\lim_{y \rightarrow \infty} \varphi_s(y, t) = \varphi_{si} \quad (4.4)$$

Lois d'échelles

Une estimation de l'épaisseur de perturbation est faite à l'aide de lois d'échelle [5]. On s'attend à obtenir un profil de concentration variant sur une épaisseur $\delta(t)$ à partir de l'interface, et la concentration initiale inchangée au-delà. Remplaçons les différents termes de l'équation 4.1 par leur ordre de grandeur, respectivement :

$$\frac{\varphi_{si} - \varphi}{t}, \quad \text{Pe}_{\text{int}} \frac{\varphi_{si} - \varphi}{\delta} \quad \text{et} \quad \frac{\varphi_{si} - \varphi}{\delta^2}. \quad (4.5)$$

Le troisième terme, qui représente la diffusion, est toujours présent. Dans les tous premiers instants il est contrebalancé par le premier (dérivée temporelle), jusqu'à un certain temps

t_1 , après lequel le deuxième terme (déplacement de l'interface) devient dominant. On a donc :

$$\delta \sim \begin{cases} \sqrt{t} & \text{si } t \leq t_1 \\ \frac{1}{\text{Pe}_{\text{int}}} & \text{si } t \geq t_1 \end{cases} \quad (4.6)$$

avec

$$t_1 \sim \frac{1}{\text{Pe}_{\text{int}}^2} \quad (4.7)$$

L'épaisseur de perturbation commence donc à croître en racine carrée du temps, comme dans tout problème de diffusion classique, puis sature à une valeur constante δ_{max} au bout d'un temps t_1 : la perturbation diffusive est alors « rattrapée » par l'interface. Pour les deux cas définis en introduction de ce chapitre (tableau 4.1) on obtient les valeurs numériques dimensionnées suivantes :

$$\delta_{\text{max}} \simeq 0.33 \text{ mm} \quad \text{et} \quad t_1 \simeq 1000 \text{ secondes} \quad (4.8)$$

Une question importante est de savoir s'il faut tenir compte de la mobilité de l'interface dans la modélisation du problème solutal. On voit d'après ce qui précède que la mobilité de l'interface est négligeable dans le premier régime ($t \leq t_1$), mais pas dans le second ($t \geq t_1$). Or ce second régime n'aura pas lieu si l'on vérifie :

$$1 \ll \delta_{\text{max}} \iff \text{Pe}_{\text{int}} \ll 1 \quad (4.9)$$

On peut donc déduire qu'il n'y a pas lieu de tenir compte de la mobilité de la surface libre si le nombre de Péclet d'interface est petit devant l'unité, condition qui n'est pas vérifiée dans les cas définis dans le tableau 4.1

4.1.3 Exemple de profils de concentration

La figure 4.3 présente un exemple d'évolution temporelle du profil de concentration dans la couche de fluide pour le cas n° 2. Comme on peut le constater, l'épaisseur δ de la perturbation (épaisseur dans laquelle la concentration en solvant varie) ne varie pas beaucoup au cours du temps mais est translatée verticalement en accord avec la diminution de l'épaisseur. Ce comportement est caractéristique de ce problème avec interface mobile. En utilisant les lois d'échelles précédemment établies (section 4.1.2), l'épaisseur δ de la perturbation est de l'ordre de $\frac{1}{\text{Pe}_{\text{int}}}$ pour un temps $t_1 > \frac{1}{\text{Pe}_{\text{int}}^2}$. Dans l'exemple, $\text{Pe}_{\text{int}} = 24$ d'où $t_1 \sim 0.0017$. Pour des temps plus courts, δ varie en \sqrt{t} comme dans tout problème classique de diffusion.

4.1.4 Effet de la concentration initiale

Un autre point important est la grande sensibilité du système à la concentration initiale de solvant. L'évolution temporelle de la fraction volumique de solvant en surface libre est présentée en figure 4.4. La concentration initiale a une grande influence sur le temps limite t_{lim} de validité du modèle correspondant à $\varphi_s = 40\%$.

On constate tout de même que ce temps limite tend asymptotiquement vers une valeur bornée lorsque $\varphi_{si} \rightarrow 1$, ce qui correspond au temps d'évaporation du solvant pur. La valeur initiale de la fraction volumique de solvant sera donc un des paramètres de contrôle et son influence sur l'évolution du système sera étudiée dans la suite.

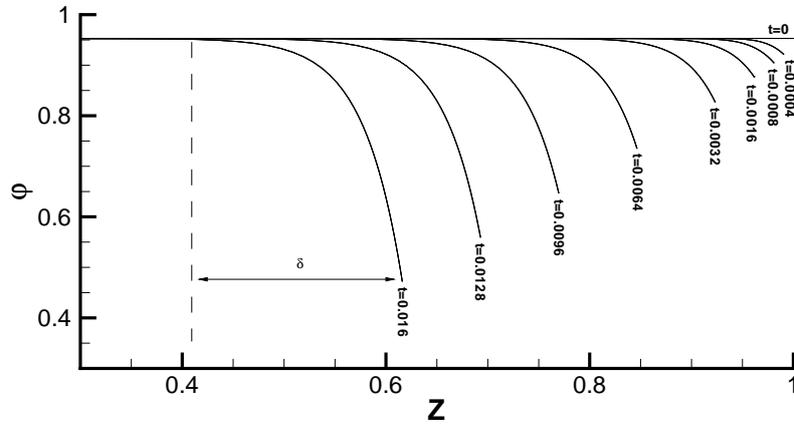


Figure 4.3 – Profil de concentration dans la couche de fluide pour différents temps, en fonction de l'abscisse adimensionnée. (Problème diffusif, $\varphi_{si} = 0.953$ et $Pe_{int} = 24$)

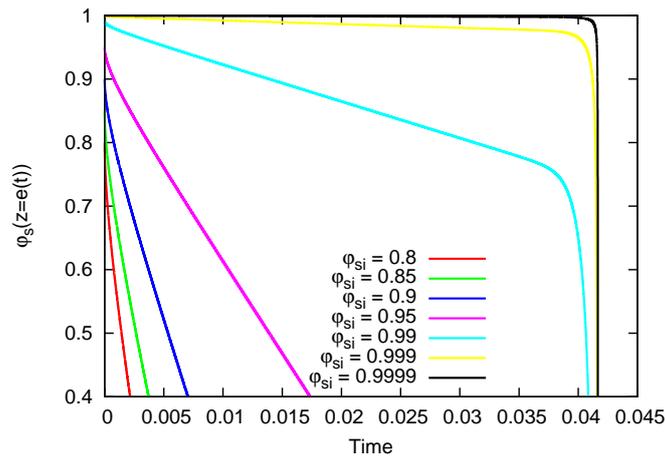


Figure 4.4 – Evolution de la concentration en solvant au niveau de la surface libre pour différentes valeurs de la concentration initiale. ($Pe_{int} = 24$).

4.2 Exemples d'états convectifs

Dans tous les essais présentés dans la partie solutale, la perturbation est imposée à $t = 0$ sur le champ de concentration. Afin de ne pas privilégier de mode particulier, la perturbation choisie est un champ aléatoire, correspondant au tirage d'une loi uniforme de moyenne nulle et d'amplitude a . Cela revient à imposer au temps initial :

$$\varphi_s(x, z, t = 0) = \varphi_{si} + \text{Rand}(x, z) \quad (4.10)$$

avec φ_{si} la fraction volumique de solvant non perturbée et $\text{Rand}(x, z)$ une valeur aléatoire choisie dans l'intervalle $[-a/2, a/2]$ selon une loi uniforme. Cette perturbation pourrait se voir physiquement comme l'homogénéité du mélange (parfaite quand a tend vers 0).

L'influence du tirage ainsi que celle de l'amplitude est analysée. Notons que des études annexes non développées ici (en particulier sur le problème thermique) ont montré que le choix du type de perturbations n'était pas crucial. En particulier, l'introduction d'une longueur de corrélation plus proche de perturbations « réelles » ne change pas la teneur des résultats [20].

Le critère qui sera utilisé dans la suite pour définir l'apparition de la convection est la vitesse moyenne quadratique adimensionnée, notée $\|\mathbf{v}\|_2$. La transition diffusif-convectif se traduit par le passage de :

$$\|\mathbf{v}\|_2 < 1 \quad \forall t \quad \text{à} \quad \exists t_c \text{ tel que } \|\mathbf{v}(t_c)\|_2 = 1 \quad (4.11)$$

Nous allons observer ci-dessous, et sur quelques exemples, la validité de ce choix ainsi que le rôle des perturbations. Ces exemples permettront également d'illustrer le caractère transitoire du problème.

Comme mentionné dans l'introduction, une des principales différences avec la configuration thermique est la mobilité de l'interface. Celle-ci est d'autant plus rapide que le nombre de Péclet d'interface (Pe_{int}) est grand. Deux exemples de convection solutale RB et BM avec $\text{Pe}_{\text{int}} = 10$ vont nous permettre de valider le critère choisi. Un autre cas test s'appuie sur la simulation du cas n° 1 (tableau 4.1 page 95).

4.2.1 Illustration d'évolutions spatio-temporelles

Nous illustrons ici les évolutions spatio-temporelle des champs de viscosité et de concentration sur deux exemples : une configuration BM et une configuration RB. Dans ces deux cas les nombres de Péclet d'interface et de Schmidt sont $\text{Pe}_{\text{int}} = \text{Sc} = 10$. La fraction volumique initiale de solvant est $\varphi_{si} = 99\%$. La viscosité est supposée variable (relation 3.32 page 81). Les seuils de transition sont supposés connus (cf. leurs déterminations en section 4.3).

Dans la configuration BM, le nombre de Marangoni pour lequel s'effectue la transition diffusif-convectif est noté Ma_c . On se place à $\text{Ma}/\text{Ma}_c = 1.1$, cela correspond à $\text{Ma} = 4950$ dans le cas d'une viscosité variable. L'amplitude de la perturbation est $a = 10^{-6}$.

Dans la configuration RB (également pur une viscosité variable et $a = 10^{-6}$), on se place à $\text{Ra}/\text{Ra}_c = 1.1$, cela correspond à $\text{Ra} = 4.73 \times 10^5$.

Le facteur de forme initial est $A_i = 10$. Les paramètres numériques utilisés ici sont les suivants : le maillage est initialement régulier et composé de $N_z = 100$ mailles dans la direction \mathbf{e}_z et de $N_x = 1000$ mailles dans la direction de \mathbf{e}_x . Le pas de temps est $\Delta t = 10^{-6}$.

Pour une perturbation initiale donnée, les figures 4.5 et 4.6 présentent les évolutions spatio-temporelles des champs de viscosité et de concentration respectivement dans les configurations BM et RB. Dans les parties de droite sont tracés les profils de fraction volumique de solvant relevés au niveau de la surface libre. Dans les deux cas on observe une déstabilisation du champ stratifié pour $0.04 \leq t \leq 0.05$. Ces figures illustrent le caractère transitoire du problème, où l'épaisseur et le champ de concentration (et donc de viscosité) évoluent fortement au cours du séchage. On peut voir que dans le cas BM il peut y avoir jusqu'à un facteur 200 entre les viscosités minimales et maximales.

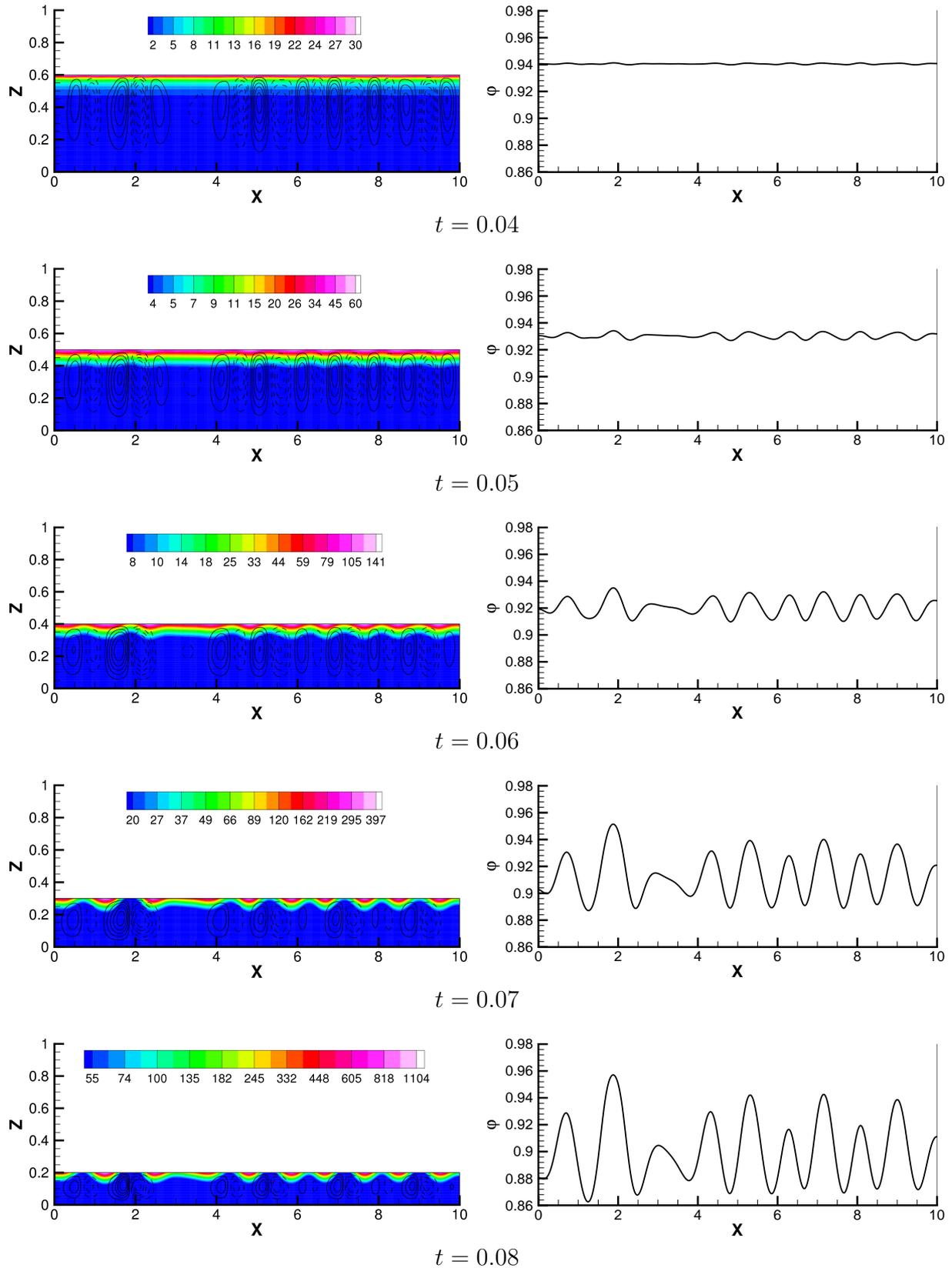


Figure 4.5 – Convection BM, viscosité variable. A gauche : champs de viscosité auquel sont superposées les lignes de courants pour différents temps. A droite : valeur du champ de concentration en surface libre pour différents temps. (Paramètres : $A_i = 10$, $\varphi_{si} = 0.99$, $Ma = 4950$, $Ra = 0$, $Pe_{int} = 10$, $Sc = 10$, viscosité variable et $a = 10^{-6}$.)

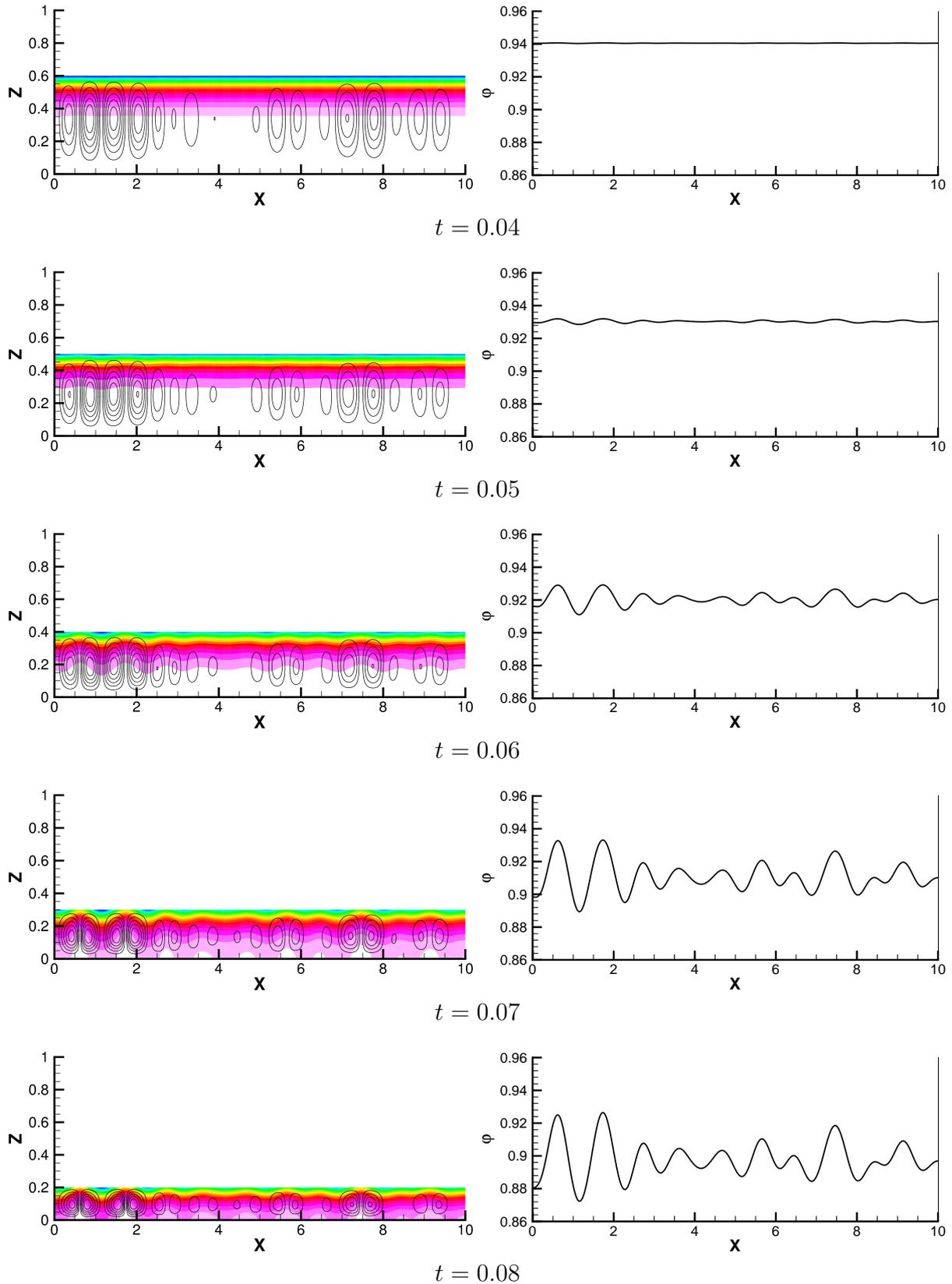


Figure 4.6 – Convection RB, viscosité variable. A gauche : champs de concentration auquel sont superposées les lignes de courants pour différents temps. A droite : valeur du champ de concentration en surface libre pour différents temps. (Paramètres : $A_i = 10$, $\varphi_{si} = 0.99$, $Ma = 0$, $Ra = 4.73 \times 10^5$, $Pe_{\text{int}} = 10$, $Sc = 10$, viscosité variable et $a = 10^{-6}$.)

4.2.2 Influence de la forme de la perturbation : temps caractéristique du passage à un état convectif

Pour le cas BM illustré en section précédente on se propose à la fois de tester le critère choisi et de regarder l'influence du tirage aléatoire initial sur l'évolution des variables. Les simulations étant assez couteuses en temps¹, les variables sont moyennées sur $N = 20$ réalisations et la moyenne d'ensemble est notée $\overline{\bullet}$. On s'intéressera notamment aux évolutions temporelles moyennées de la vitesse moyenne $\|\mathbf{v}\|_2$ ainsi que de l'écart de concentration entre les valeurs moyennes (spatiales, notées $\langle \bullet \rangle$) de concentration relevées en surface libre ($z = e(t)$) et au fond de la cavité ($z = 0$) :

$$\overline{\Delta\varphi_s} = \overline{\langle \varphi_s(z=0) \rangle - \langle \varphi_s(z=e(t)) \rangle}. \quad (4.12)$$

Lorsqu'elles sont représentées, les barres d'erreurs représentent l'écart type de la variable autour de sa valeur moyenne.

L'évolution temporelle des champs de vitesse et de concentration permet de définir deux temps critiques d'apparition de l'état convectif. Le premier basé sur la vitesse $\|\mathbf{v}\|_2$ et noté $t_{c,v}$ est tel que $\|\mathbf{v}(t_{c,v})\|_2 = 1$. C'est celui qui sera utilisé dans la suite du document, sauf précision contraire. Ce temps est comparé à celui obtenu en regardant un écart sur la concentration par rapport à la solution diffusive. On définit un temps critique basé sur la différence par rapport à l'état diffusif $t_{c,diff}$, tel que $\left| \frac{\Delta\varphi_{diff} - \Delta\varphi_s}{\Delta\varphi_{diff}} \right| > 0.1\%$

Temps de transition

Les évolutions temporelles de $\|\mathbf{v}\|_2$ ainsi que de $\overline{\Delta\varphi_s}$ sont présentées en figure 4.7. Sur la courbe d'évolution de la vitesse, le critère $\|\mathbf{v}\|_2 = 1$ est représenté. En moyenne, la convection est active pour un temps $t \gtrsim 0.045$. La vitesse évolue ensuite jusqu'à un maximum pour $t \simeq 0.070$ puis chute.

On s'intéresse maintenant à l'évolution de l'écart moyen de concentration $\overline{\Delta\varphi_s}$. On le compare au cas purement diffusif (ligne pointillé) et l'on constate que l'on s'écarte de la solution diffusive pour $0.05 \lesssim t \lesssim 0.06$.

Si l'on regarde plus finement les temps critiques, on obtient $\overline{t_{c,v}} = 4.81 \times 10^{-2}$ et $\overline{t_{c,diff}} = 5.12 \times 10^{-2}$. La différence relative sur t_c entre les deux critères est de l'ordre de 6%. Ces temps est cohérent avec la déstabilisation de l'état diffusif (figure 4.5)

Dispersion des variables

La dispersion des variables autour de leurs valeurs moyennes est également estimée. On calcule ici les coefficient de variation (écart type divisé par la valeur moyenne) de $\|\mathbf{v}\|_2$, $\Delta\varphi_s$ et $t_{c,v}$ et on obtient respectivement, au maximum, $CV(\|\mathbf{v}\|_2) = 30\%$, $CV(\Delta\varphi_s) = 2.5\%$ et $CV(t_{c,v}) = 4.4\%$. On en déduit que la réalisation initiale a un impact modéré sur l'évolution de la vitesse et assez faible sur les évolutions de l'écart de concentration ainsi que sur la détermination du temps de transition.

Cette vérification de la cohérence du critère de transition à également été faite pour la configuration RB et les résultats sont similaires.

¹170 heures CPU par calcul sur un processeur Intel Xeon cadencé à 2 GHz

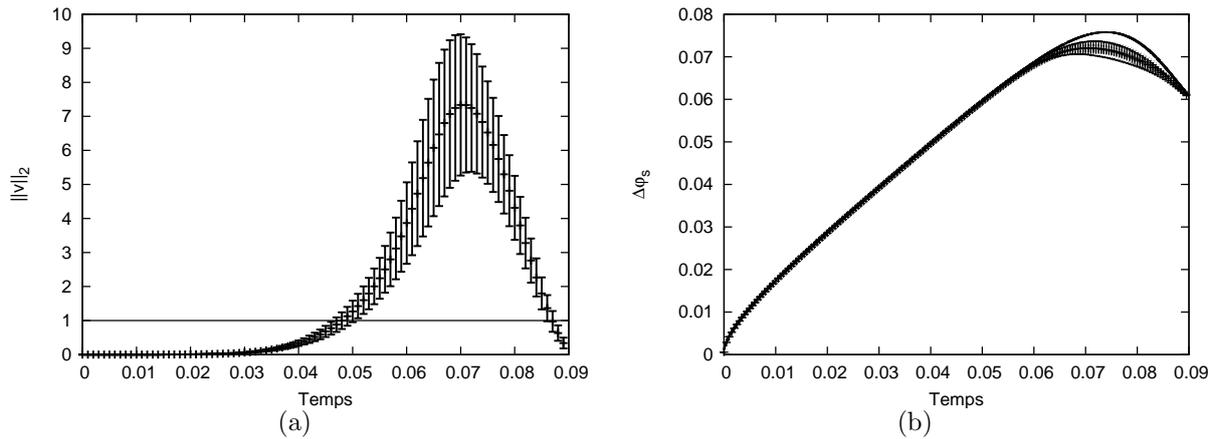


Figure 4.7 – Convection BM, viscosité variable. (a) Evolution temporelle de la vitesse moyenne $\|v\|_2$ et écart type, la courbe droite représente le critère convectif; (b) Evolution temporelle de $\Delta\varphi_s$ et écart type, la courbe pleine représente la solution diffusive. (Paramètres : $A_i = 10$, $\varphi_{si} = 0.99$, $Ma = 4950$, $Ra = 0$, $Pe_{int} = 10$, $Sc = 10$, viscosité constante et $a = 10^{-6}$.)

4.2.3 Influence de l’amplitude de la perturbation sur la cas n° 1

Nous complétons cette étude préliminaire sur le choix du critère et l’influence des perturbation initiales sur le cas test n° 1. La viscosité est variable. Ce cas est très instable par rapport l’effet Marangoni.

Les nombres adimensionnés peuvent être retrouvées dans le tableau 4.1 (page 95). Le facteur de forme initial est $A_i = 10$. Le nombre de mailles dans la direction verticale est $N_z = 150$ et on utilise toujours $N_x = A_i \times N_z$ mailles dans la direction horizontale. De plus le maillage vertical est raffiné à proximité de la surface libre selon une suite géométrique de raison $C_z = 0.95$. Le pas de temps initial utilisé est $\Delta t = 5 \times 10^{-8}$. Ce pas de temps est ensuite lentement relaxé (dès que la convection apparaît) jusqu’à $\Delta t = 5 \times 10^{-7}$. Les simulations sont initialisées avec un champ de concentration uniforme auquel est superposé une perturbation issue d’un tirage aléatoire d’amplitude a .

Temps critique

Pour plusieurs amplitudes de la perturbation initiale, l’évolution de la vitesse adimensionnelle $\|v\|_2$ au cours du temps est montrée en figure 4.8(a). Seul le début du séchage est présenté : le temps atteint est de 5×10^{-3} ce qui correspond grossièrement à 50 fois le temps nécessaire à l’apparition de la convection. La plage d’amplitudes utilisée, ici $a \in [10^{-10}; 10^{-6}]$, est bornée de telle sorte que :

- l’amplitude initiale ne provoque pas un déclenchement instantané de la convection (ie. une vitesse de l’ordre de 1)
- l’évolution de la vitesse aux temps courts dépende de l’amplitude et pas des erreurs numériques provenant du schéma. (Dans le cas présent, les erreurs numériques se font ressentir sur l’évolution de la vitesse pour des amplitudes de perturbations inférieures à 10^{-10} .)

Ce choix se traduit par l’observation d’un régime linéaire en début de séchage.

On s'intéresse au temps de transition t_c définissant l'état convectif. Avec le critère $\|\mathbf{v}\|_2 > 1$ on constate qu'il dépend de l'amplitude de la perturbation initiale. Dans la plage d'amplitudes considérée, ce temps est compris entre $t_c = 8.1 \times 10^{-5}$ et $t_c = 2.2 \times 10^{-4}$, pour des amplitudes respectivement de 10^{-6} et 10^{-10} . Le choix de l'amplitude de la condition initiale dans une plage de 4 décades modifie donc le temps d'apparition de la convection seulement d'un facteur 3.

La figure 4.8(b) montre, pour la même plage d'amplitudes, l'évolution de l'écart de concentration en solvant estimée a partir des valeurs moyennes de concentration au fond de la cavité et en surface libre, $\Delta\varphi_s = \langle \varphi_s(z=0) \rangle - \langle \varphi_s(z=e) \rangle$. L'évolution de la solution dans le cas purement diffusif est superposée aux courbes, ce qui permet d'évaluer le temps critique d'apparition par rapport à l'écart à la solution diffusif (par exemple de 0.1%). La sensibilité du champ de concentration à la perturbation est visible pour des temps allant jusqu'à environ 4×10^{-4} .

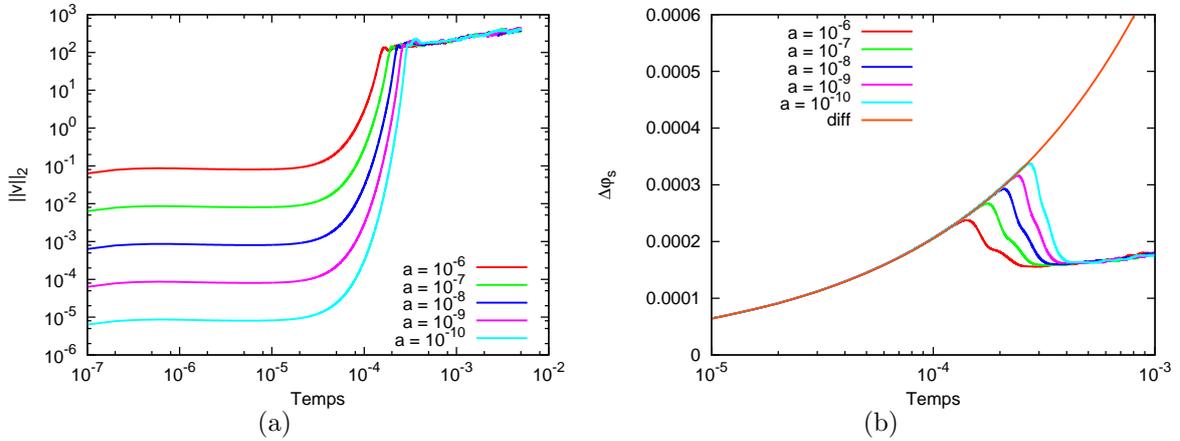


Figure 4.8 – Cas n° 1. (a) Evolution temporelle de la vitesse adimensionnée pour plusieurs amplitudes de la perturbation initiale. Echelle logarithmique. (b) Evolution temporelle de $\Delta\varphi_s$ pour plusieurs amplitudes de la perturbation initiale et superposition avec l'état diffusif. ($A_i = 10$.)

On observe, indépendamment de l'amplitude, que $t_{c,v}$ et $t_{c,diff}$, respectivement obtenus avec les critères portant sur la vitesse et sur l'écart par rapport à la solution diffusif sont différents. La différence relative $\left| \frac{t_{c,diff} - t_{c,v}}{t_{c,diff}} \right|$ est présentée dans le tableau 4.2. On constate que l'effet du critère choisi est modeste pour les amplitudes les plus faibles et atteint 26% pour une amplitude de 10^{-6} .

Le temps de transition maximal est obtenu avec une amplitude $a = 10^{-10}$ et le critère sur la solution diffusif donne $t_c \simeq 2.52 \times 10^{-4}$, ce qui correspond à 2.52 secondes. A l'opposé, avec une amplitude $a = 10^{-6}$, le système se déstabilise plus rapidement, $t_c \simeq 8.10 \times 10^{-5}$ soit 0.81 seconde. L'amplitude de la perturbation initiale a donc un impact non négligeable sur le temps de transition (à l'échelle où l'on se place). Cependant, dans tous les cas, les deux critères donnent le même ordre de grandeur du temps de transition, lequel est toujours très inférieur au temps de validité du modèle (t_{lim} tel que $\max \varphi_s(t_{lim}) = 0.4$). Ici on a $t_{lim} \simeq 0.3$.

L'évolution de l'écart de concentration $\Delta\varphi_s$ (figure 4.8(b)) ainsi que de la vitesse remise à l'échelle par rapport à sa valeur initial (figure 4.9), permettent de mettre en

amplitude a	$t_{c,v}$	$t_{c,diff}$	$\frac{t_{c,diff}-t_{c,v}}{t_{c,diff}}$
10^{-6}	8.10×10^{-5}	1.11×10^{-4}	26.1%
10^{-7}	1.20×10^{-4}	1.49×10^{-4}	19.4%
10^{-8}	1.56×10^{-4}	1.84×10^{-4}	15.2%
10^{-9}	1.91×10^{-4}	2.19×10^{-4}	12.7%
10^{-10}	2.24×10^{-4}	2.52×10^{-4}	11.1%

Tableau 4.2 – Cas n° 1. Comparaison des temps critiques et estimation de l’erreur par rapport à la solution diffusive.

avant l’existence d’un régime linéaire pour un temps grossièrement inférieur à 10^{-4} (~ 1 seconde). Ce temps dépend de la gamme d’amplitude choisie. Pour des temps plus longs ($t > 5 \times 10^{-4}$), l’évolution de la vitesse est qualitativement la même (figure 4.8(a)).

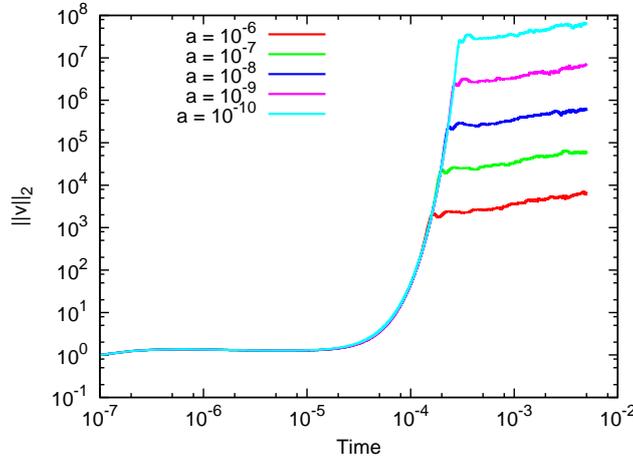


Figure 4.9 – Cas n° 1. Evolution temporelle des vitesses normalisées par leur valeur au temps initial. ($A_i = 10$.)

Conclusion

Plusieurs points émergent de l’étude de ces différents exemples. Tout d’abord, l’impact de la réalisation initiale est négligeable. Au voisinage du seuil une dispersion d’environ 30% sur la vitesse est observée. Compte tenu des résultats similaires obtenus dans le régime thermique, l’impact de la réalisation ne sera pas étudiée plus en détails dans la suite. L’amplitude de la perturbation est quant à elle non négligeable (uniquement à l’échelle du temps de transition). La faire varier sur 4 décades entraîne une variation d’une demi-décade sur le temps de transition t_c . Si on compare ce temps de transition au temps de validité du modèle $t_{lim} \simeq 0.3$, l’influence de la perturbation est négligeable.

L’effet de la condition initiale (amplitude) sur les valeurs de transition des nombres de Rayleigh et Marangoni sera abordée dans la section suivante.

Enfin, lorsque l’on est suffisamment loin du seuil de transition, on observe un régime quasi-stationnaire (pour $t > t_c$), qui dépend très peu (qualitativement) de la condition initiale.

4.3 Détermination des seuils de transition

On s'intéresse dans cette section à l'estimation des seuils de transition diffusif-convectif. Comme indiqué en section 3.1, le problème dépend de cinq grandeurs sans dimension : $\mathcal{Q} = (\varphi_{si}, Pe_{int}, Sc, Ma, Ra)$. L'étude des seuils de transition est effectuée avec la démarche suivante : Pour un nombre de Schmidt fixé, une fraction volumique initiale de solvant φ_{si} fixée et pour différentes valeurs du Péclet d'interface, la recherche de seuils se ramène à trouver les nombres de Marangoni et Rayleigh critiques, respectivement Ma_c et Ra_c , tel que le critère définissant la convection soit atteint (passage de $\forall t$ alors $\|\mathbf{v}(t)\|_2 < 1$ à $\exists t_c$ tel que $\|\mathbf{v}(t_c)\|_2 \geq 1$). L'effet Marangoni et la poussée d'Archimède sont considérés de manière indépendante. Dans les deux configurations, notées BM et RB, on s'intéresse dans un premier temps à l'impact de l'amplitude de la perturbation.

Par la suite, la faible dépendance des seuils avec le nombre de Schmidt sera évaluée pour un nombre de Péclet d'interface donné.

Enfin, à amplitude et Sc fixés, les seuils de transition sont estimés dans le plan (Pe_{int}, Ma) ou (Pe_{int}, Ra) , pour différentes valeurs de la concentration initiale.

4.3.1 Influence de l'amplitude de la perturbation

Convection de type Bénard-Marangoni

Seuls l'effet Marangoni est considéré dans cette partie ($Ra = 0$). La figure 4.10(a) présente le nombre de Marangoni critique Ma_c en fonction du nombre de Péclet d'interface Pe_{int} pour différentes amplitudes de la perturbation, $a \in [10^{-8}; 10^{-4}]$. L'écoulement est dans un état stable (diffusif) en dessous des courbes. Les autres paramètres sont $Sc = 10$ et $\varphi_{si} = 0.953$. L'influence de la viscosité (constante ou variable) est également regardée.

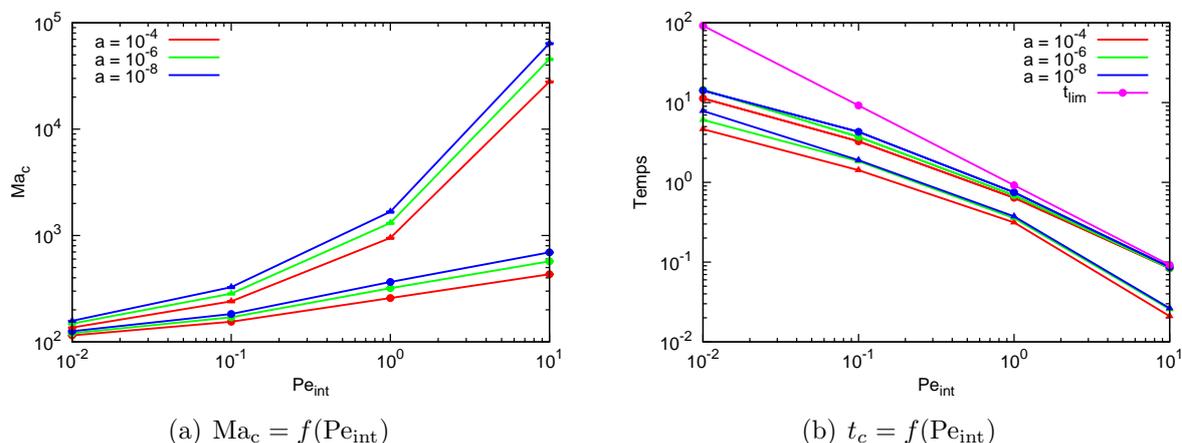


Figure 4.10 – Convection BM. Seuils et temps de transitions en fonction de l'amplitude de la perturbation initiale. Ronds : viscosité constante ; Triangles : viscosité variable. ($a \in [10^{-8}; 10^{-4}]$, $A_i = 10$, $Ra = 0$, $Sc = 10$ et $\varphi_{si} = 0.953$.)

On distingue nettement l'influence de la viscosité sur la détermination des seuils. Pour les grandes valeurs du nombre de Péclet d'interface, $Pe_{int} = 10$, l'augmentation de la viscosité dans les simulations effectuées avec une viscosité variable stabilise l'écoulement et le nombre de Marangoni nécessaire pour observer un état convectif est multiplié par 100.

L'évolution du temps de transition t_c en fonction de Pe_{int} est présentée en figure 4.10(b) pour les mêmes valeurs de l'amplitude de la perturbation initiale et il est comparé au temps limite t_{lim} de validité du modèle. On rappelle que t_{lim} correspond au temps pour lequel la fraction volumique de solvant en surface libre atteint 40% ($\min \varphi_s(t_{lim}) = 0.4$). On voit que t_c décroît avec l'augmentation de Pe_{int} . On constate que t_{lim} est proche de t_c pour des valeurs du nombre de Péclet d'interface élevées. Dans cette limite, la convection est observée juste avant que la fraction volumique de solvant atteigne 40%. L'exemple traité ici permet d'étudier des cas allant jusqu'à $Pe_{int} = 10$.

Dans le cas où la viscosité est variable et dans la limite $Pe_{int} = 10$, la déstabilisation de l'écoulement doit intervenir avant que la viscosité en surface ne devienne trop importante. Le temps critique est alors réduit et $t_{lim} \neq t_c$.

Remarque : Au voisinage du seuil, le temps limite de validité du modèle est proche pour les configurations à viscosité constante et variables, ainsi que pour le problème diffusif.

Convection de type Rayleigh-Bénard

La même étude est réalisée dans le cadre d'une convection de type Rayleigh-Bénard ($Ma = 0$). La figure 4.11 présente les nombres de Rayleigh critiques Ra_c ainsi que le temps de transition t_c obtenus en viscosités constante et variable, pour plusieurs valeurs de Pe_{int} . L'influence de la viscosité est plus faible que dans le cas BM. Une explication possible serait que dans le cas dominé par l'effet Marangoni, les viscosités les plus fortes sont localisées en surface libre tout comme le terme moteur de l'écoulement tandis qu'ici le moteur de l'écoulement est lié aux forces volumiques. L'influence de la viscosité est moindre et pour $Pe_{int} = 10$, un ordre de grandeur sépare le cas avec une viscosité variable de celui à viscosité constante.

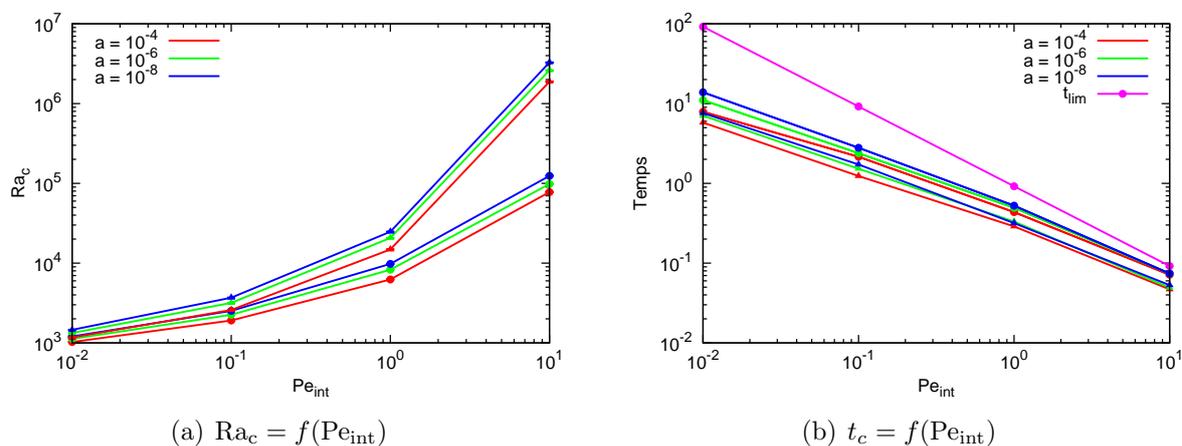


Figure 4.11 – Convection RB. Seuils de transitions et temps critiques en fonction de l'amplitude de la perturbation initiale. Ronds : viscosité constante ; Triangles : viscosité variable. ($a \in [10^{-8}; 10^{-4}]$, $A_i = 10$, $Ma = 0$, $Sc = 10$ et $\varphi_{si} = 0.953$.)

Conclusion sur les effets de la condition initiale

Que ce soit en configuration BM ou RB, le fait de changer l'amplitude de la perturbation initiale de plusieurs ordres de grandeur a un impact relativement faible sur la

détermination des seuils et du temps de transition. Avec $a = 10^{-8}$ comme cas référence, multiplier par 100 l'amplitude décale les seuils de transition (linéairement avec $\log_{10}(Pe_{\text{int}})$) de 5% pour $Pe_{\text{int}} = 10^{-2}$ et 30% pour $Pe_{\text{int}} = 10$. En multipliant par 10000, on les décale de 15% pour $Pe_{\text{int}} = 10^{-2}$ et 55% pour $Pe_{\text{int}} = 10$ ce qui correspond à de petites variations sur les seuils compte tenu de la plage de valeurs balayées par les paramètres critiques. Respectivement, on a $Ma \in [10^2; 10^5]$ et $Ra \in [10^3; 10^7]$.

En intégrant l'effet de la réalisation initiale, on en conclut que l'incertitude portant sur la détermination des seuils due à la condition initiale est petite et peut permettre une étude de stabilité dans le sens où il est possible de déterminer une zone assez fine (comparée à la plage de valeurs balayée par les nombre de Rayleigh et Marangoni) entre les régimes stable et instable. Des conclusions similaires dans le cas de l'étude du régime thermique peuvent être trouvées dans [64, 26] et dans la première partie de cette thèse.

4.3.2 Influence du nombre de Schmidt

Jusqu'à présent les simulations ont été réalisées avec un nombre de Schmidt $Sc = 10$ tout en supposant que ce paramètre a peu d'influence sur les seuils de transitions. Cette hypothèse est justifiée par l'étude thermique [64, 26], qui met en évidence le faible rôle du nombre de Prandtl dans la configuration thermique². L'analogie $Sc \equiv Pr$ laisse supposer que le nombre de Schmidt n'a pas, ou peu, d'influence sur les seuils de transition.

Pour des viscosités constante et variable, les figures 4.12 et 4.13 montrent Ma_c et Ra_c estimés pour une large gamme de nombres de Schmidt : $Sc \in [1, 10^5]$. Le nombre de Péclet d'interface est $Pe_{\text{int}} = 1$, $\varphi_{si} = 0.953$ et l'amplitude initiale $a = 10^{-6}$. Les barres d'erreurs estiment l'intervalle dans lequel se situe le paramètre critique³.

Dans les quatre configurations présentées, les valeurs critiques Ma_c et Ra_c décroissent d'environ 30% dans l'intervalle définie par $Sc \in [1; 10]$. Comparé à l'impact de l'amplitude l'effet du Sc est important mais il sera négligé dans la suite. En effet, pour des solutions polymères on a typiquement $Sc \in [10^4; 10^8]$. Pour ces valeurs, les paramètres critiques sont constants.

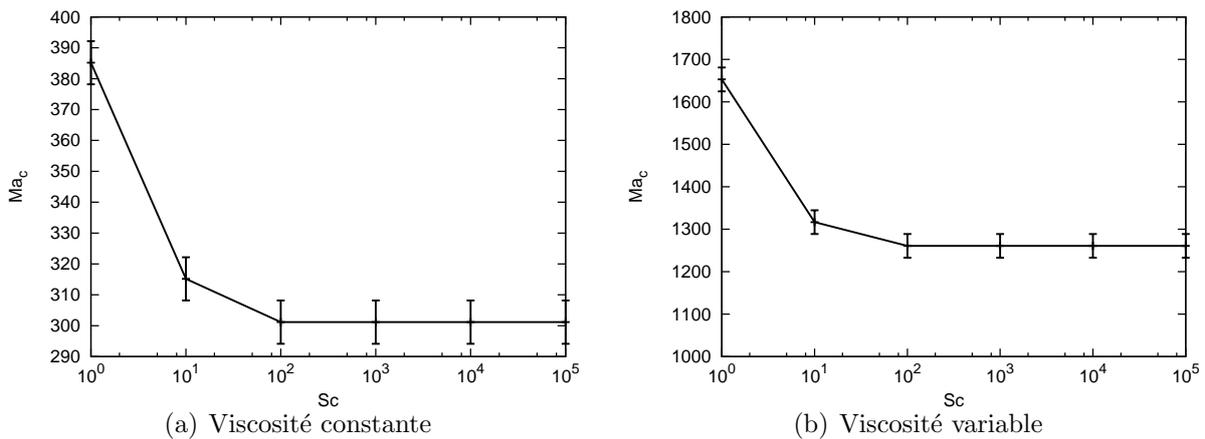


Figure 4.12 – Convection BM. Nombre de Marangoni critique Ma_c en fonction du nombre de Schmidt ($Ra = 0$, $Pe_{\text{int}} = 1$, $\varphi_{si} = 0.953$ et $a = 10^{-6}$.)

²Les seuils déterminés avec $Pr = 10$ sont les même que dans la limite $Pr \rightarrow \infty$

³La borne supérieure (inférieure) est Ma ou Ra tel que $\|\mathbf{v}\| > 1$ ($\|\mathbf{v}\| < 1$)

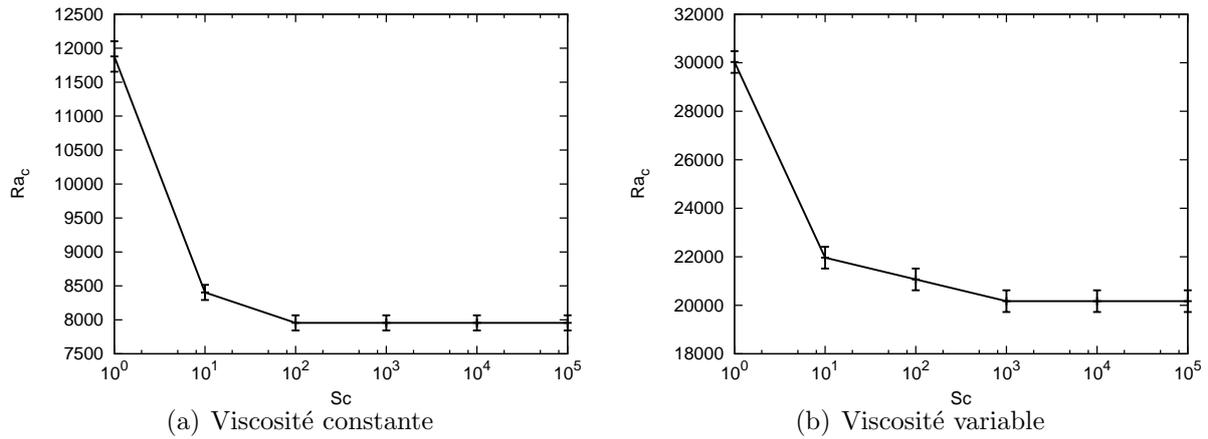


Figure 4.13 – Convection RB. Nombre de Rayleigh critique Ra_c en fonction du nombre de Schmidt ($Ma = 0$, $Pe_{int} = 1$, $\varphi_{si} = 0.953$ et $a = 10^{-6}$.)

4.3.3 Influence de la concentration initiale de solvant

Comme constaté dans le problème diffusif (section 4.1), l'évolution temporelle du champ de concentration ainsi que la cinétique de séchage dépend de la fraction initiale de solvant. Dans cette section on s'intéresse à l'influence de ce paramètre dans des cas où la convection est présente.

On s'intéresse dans la suite aux seuils de transition (ie $Ma_c = f(Pe_{int})$ et $Ra_c = f(Pe_{int})$), pour différentes valeurs de la concentration initiale de solvant. L'influence de la viscosité sera elle aussi mise en évidence.

Viscosité constante

La figure 4.14 présente les seuils de transition diffusion-convection pour différentes valeurs de la concentration initiale en solvant ($\varphi_{si} \in [0.8; 0.99]$) ainsi que les temps caractéristiques t_c et t_{lim} .

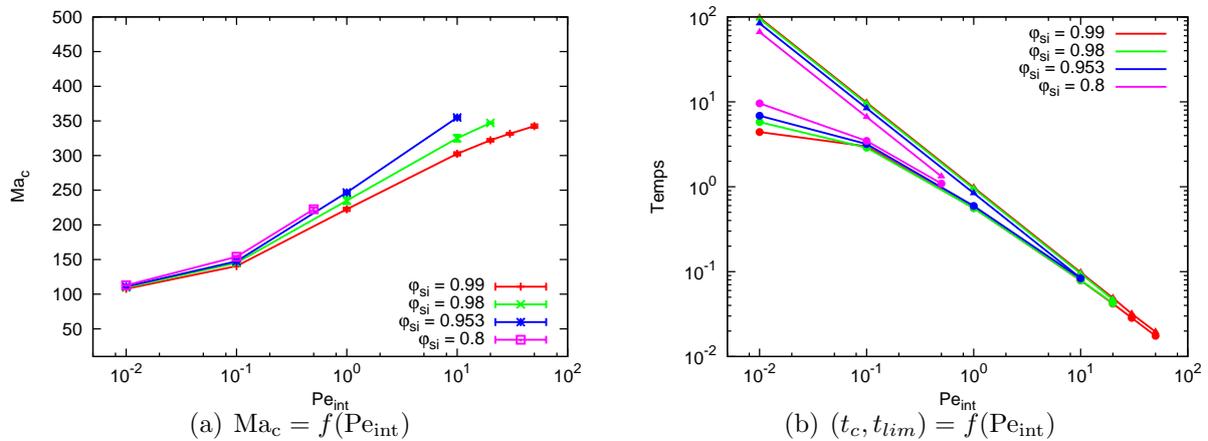


Figure 4.14 – Convection BM, viscosité constante. (a) Seuils de transition; (b) temps critique t_c (ronds) et limite t_{lim} (triangles) pour différentes fractions initiales de solvant. ($A_i = 10$, $Sc = 10$, $Ra = 0$ et $a = 10^{-3}$.)

La concentration initiale à une influence sur les seuils de transition pour des vitesses d'interface suffisamment grandes. Pour $Pe_{\text{int}} = 10^{-2}$, $\forall \varphi_{si} \in [0.8; 0.99]$, $Ma_c \in [107; 114]$, ce qui correspond à une différence de 6% entre la valeur minimale et maximale tandis que pour $Pe_{\text{int}} = 10$, $Ma_c \in [300; 360]$, ce qui correspond à un écart de 16%.

La concentration initiale de solvant est intégrée dans l'expression du nombre de Marangoni (et de Rayleigh) au travers du terme $\Delta\varphi$. De ce fait, le même Ma_c pour deux valeurs différentes de la concentration initiale en solvant ne correspond pas à la même configuration critique dans le plan épaisseur/viscosité. Ce point sera traité plus en détail dans la section 4.4 où les seuils de transition seront donnés dans le plan épaisseur initiale/viscosité initiale (concentration initiale).

En configuration Rayleigh-Bénard, les résultats sont similaires. Toutefois, les seuils de transition varient de plusieurs décades et l'influence de la concentration initiale de solvant est encore moins visible. Ces résultats sont présentés en figure 4.15. De la même façon que la configuration Bénard-Marangoni, la fraction initiale de solvant est comprise dans le nombre de Rayleigh.

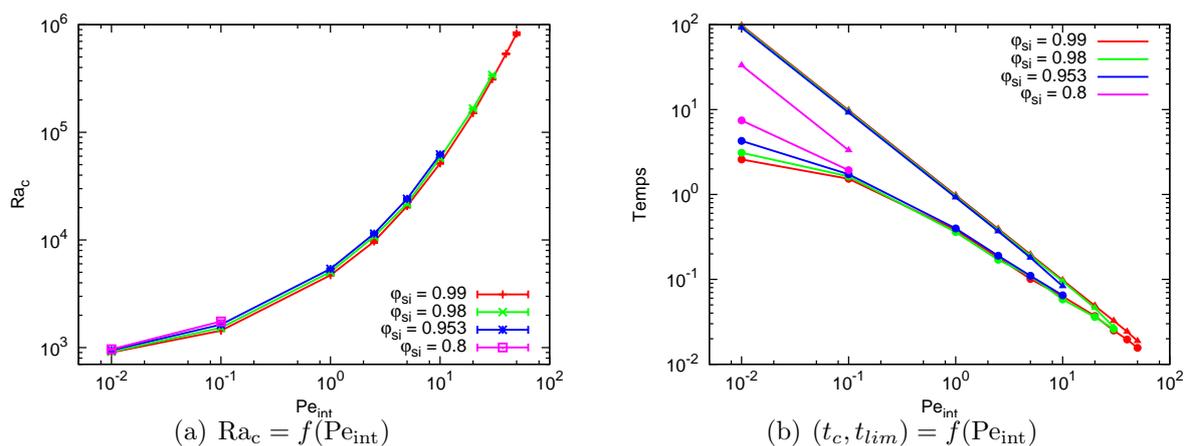


Figure 4.15 – Convection RB, viscosité constante. (a) Seuils de transition; (b) temps critique t_c (ronds) et limite t_{lim} (triangles) pour différentes fractions initiales de solvant. ($A_i = 10$, $Sc = 10$, $Ra = 0$ et $a = 10^{-3}$.)

En conclusion de cette sous section, l'influence de la concentration initiale de solvant sur les seuils de transition en viscosité constante est faible en configuration BM et peut être négligée en configuration RB compte tenu de la plage de variation du nombre de Rayleigh critique. Les temps de transition obtenus dans les deux configurations sont comparables.

Viscosité variable

On regarde maintenant le cas où la viscosité varie avec la concentration de solvant. La figure 4.16 présente dans la configuration Bénard-Marangoni les seuils de transitions obtenus pour différentes fractions initiales de solvant ($\varphi_{si} \in [0.8; 0.9999]$). Pour des petits Pe_{int} , l'influence de la viscosité est faible mais prend toute son importance dès que Pe_{int} est supérieur à l'unité. On constate qu'il y a plus d'une décade de différence entre la

courbe de stabilité obtenue avec $\varphi_{si} = 0.9$ et $\varphi_{si} = 0.99$. On note que lorsque l'on tend vers du solvant pur ($\varphi \rightarrow 1$), Ma_c devient de plus en plus indépendant du nombre de Péclet d'interface Pe_{int} .

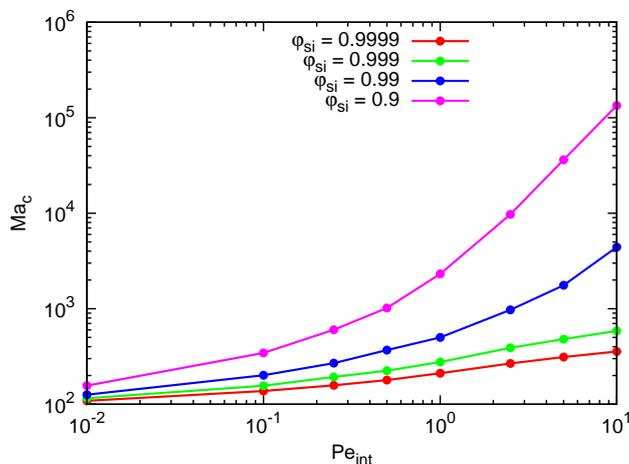


Figure 4.16 – Convection BM, viscosité variable. $Ma_c = f(Pe_{int})$ pour différentes fraction initiales de solvant. ($A_i = 10$, $Ra = 0$, $Sc = 10$ et $a = 10^{-6}$.)

En configuration de Rayleigh-Bénard le comportement est comparable, l'influence de la concentration initiale de solvant est notable, cependant elle est moins amplifiée que dans le cas Bénard-Marangoni (figure 4.17). Une explication possible serait que les termes moteurs sont des forces volumiques tandis que dans le cas Bénard-Marangoni ce sont les forces surfaciques qui engendrent le mouvement. La viscosité variant de façon exponentielle avec la concentration en solvant, une couche de viscosité plus importante se forme au niveau de la surface libre et des valeurs de Ma_c plus grandes sont nécessaires pour déstabiliser la couche de fluide. Ce phénomène est amplifié par la vitesse d'évaporation du fluide.

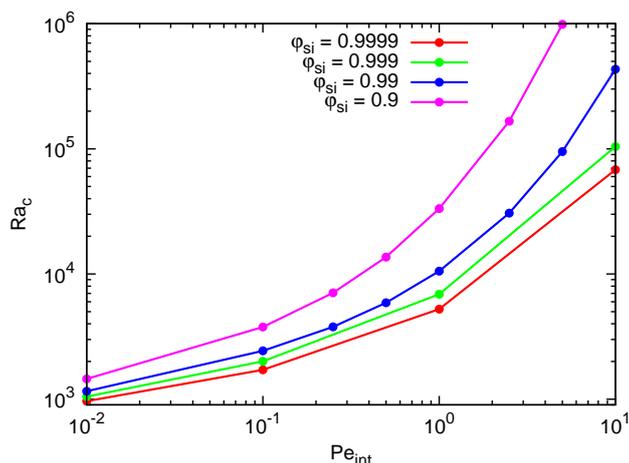


Figure 4.17 – Convection RB, viscosité variable. $Ra_c = f(Pe_{int})$ pour différentes fraction initiales de solvant. ($A_i = 10$, $Ma = 0$, $Sc = 10$ et $a = 10^{-6}$.)

On constate que les seuils de transitions en viscosité variable sont très sensibles à la valeurs de la concentration initiale de solvant. De plus, ces derniers résultats mettent une nouvelle fois en avant l'influence dominante de la viscosité par rapport aux autres paramètres entrant en compte dans les conditions initiales.

4.4 Comparaison aux travaux expérimentaux

Dans la dernière partie de ce manuscrit, nous revenons dans le plan des paramètres expérimentaux : l'épaisseur initiale e_i et la concentration initiale φ_{si} (ou la viscosité). Ceci nous permet de faire une comparaison avec les résultats issus de l'analyse du régime transitoire thermique présent en début de séchage. Jusqu'à présent les seuils de stabilité sont déterminés dans l'espace des paramètres adimensionnels auquel on ajoute une loi de variation de la viscosité avec la concentration (cf. relation 3.9 page 78). Pour une solution de PIB/Toluène, dont la vitesse d'évaporation est constante et fixée ($v_{evap} = 3 \times 10^{-3}$ m/s), ces seuils peuvent être ramenés dans le plan des paramètres expérimentaux. Cette transformation est autorisée dans la limite où le nombre de Schmidt n'a pas d'influence sur les seuils de transition si $Sc > 10$. Le Sc pour une solution polymère est généralement grand ($Sc > 10^5$). Les autres paramètres physiques sont répertoriés dans le tableau 3.1 (page 78).

4.4.1 Problème solutal de type Rayleigh-Bénard ou Bénard-Marangoni ?

La figure 4.18 présente, en fonction de la fraction volumique initiale de polymère ($\varphi_p = 1 - \varphi_s$), l'épaisseur initiale nécessaire (en mm) au développement d'un état convectif (carte déduite des figures 4.14(a), 4.15(a), 4.16 et 4.17). La stabilité des configurations RB et BM est représentée pour des viscosités variable et constante. L'écoulement est instable si l'on se place au-dessus des courbes et stable si l'on se place en dessous. Contrairement au cas thermique, ces courbes présentent un minimum. En effet, lorsque $\varphi_{pi} \rightarrow 0$ (solvant pur) la convection solutale n'est pas possible et il n'existe pas d'épaisseur critique. Lorsque φ_{pi} est grand, ce sont les effets induits par l'augmentation de la viscosité qui entraînent une augmentation de l'épaisseur critique.

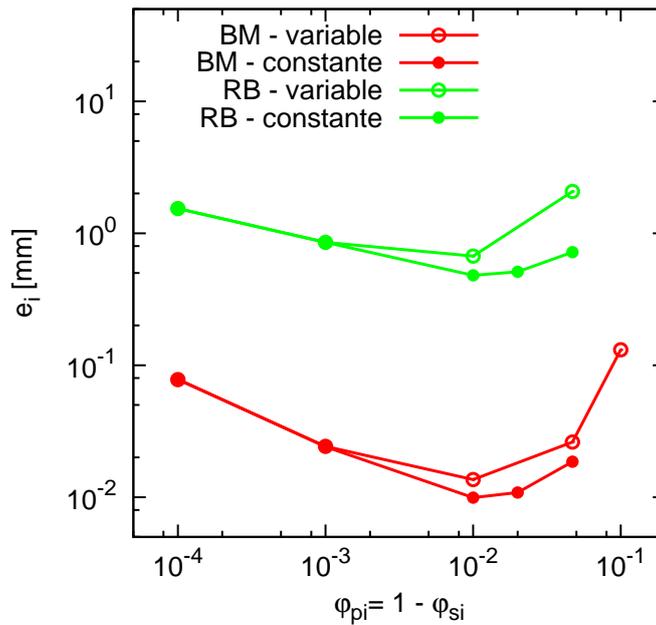


Figure 4.18 – Carte de stabilité de l'écoulement dans des configurations RB et BM pour une solution de PIB/Toluène. ($v_{evap} = 3 \times 10^{-3}$ m/s.)

On peut voir qu'il n'y a pas de changement de régime dans la gamme de concentration $\varphi_p \in [0.0001; 0.2]$. Quelle que soit la concentration initiale, l'effet Marangoni est toujours le plus déstabilisant. Il se fait sentir dès que l'épaisseur de la solution est supérieure à 0.01 mm tandis que la poussée d'Archimède se manifeste pour des épaisseurs supérieures à 1 mm.

Pour les très faibles fractions volumique en polymère et les petits Pe_{int} , les figures 4.16 et 4.17 montrent que Ma_c et Ra_c varient peu. Ceci est cohérent avec les pentes en $-1/2$ et $-1/4$ pour BM et RB respectivement observées en figure 4.18 pour les faibles valeurs de φ_{pi} .

4.4.2 Comparaison des cartes de stabilité solutale et thermique

Nous comparons les seuils de stabilité obtenus dans les configurations thermique et solutale.

La figure 4.19 trace, dans le plan épaisseur/viscosité, les courbes de stabilité des régimes BM et RB solutaux (avec viscosité variable) ainsi que la courbe de stabilité obtenue avec le modèle thermique ($a = 10^{-3}$).

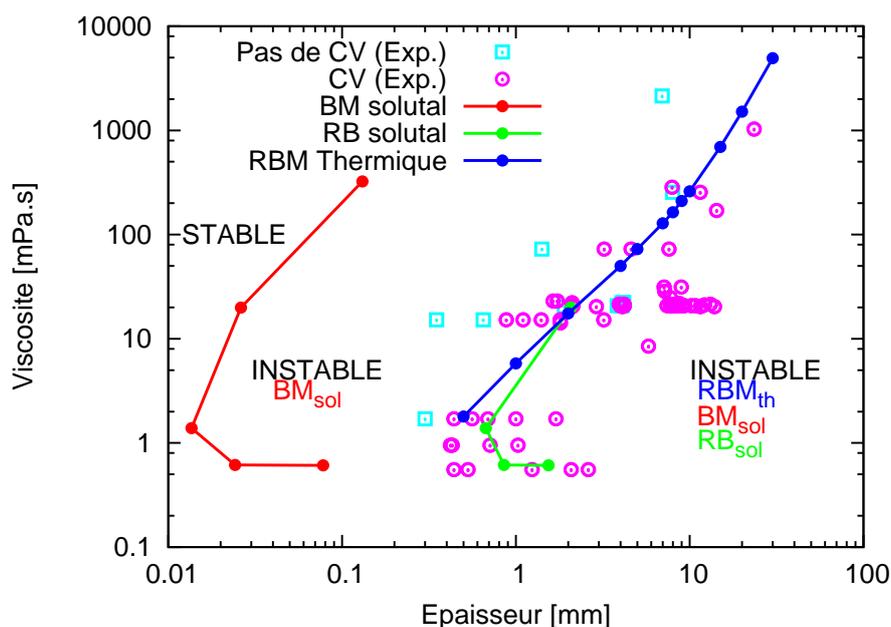


Figure 4.19 – Carte de stabilité. Les seuils de transition solutaux sont pour une viscosité variable. (Solution de PIB/Toluène)

En dehors du solvant⁴ pur on constate que le mécanisme le plus déstabilisant correspond à l'effet Marangoni solutal. Les seuils correspondant aux instabilités de type RBM thermique et RB solutal sont proches. Ces résultats vont dans le même sens que ceux obtenus par Machrafi *et al.* [45] qui mettent en évidence que, dans le cas d'une solution eau-éthanol, l'effet Marangoni d'origine solutale représente le mécanisme le plus déstabilisant. Ce comportement a également été évoqué par De Gennes [30]. La même conclusion peut être tirée ici. Dans [2], Bassou et Rharbi observent expérimentalement

⁴correspond aux cinq point les plus bas (en viscosité).

de la convection solutale pour des épaisseurs initiales comprises entre 0.25 et 1.4 mm. Leur système est une solution polymère différente (PS/Toluène) mais la cinétique de séchage est la même (flux d'évaporation constant). Leur plage de fraction volumique initiale de solvant est $80\% < \varphi_{si} < 95\%$. Nous avons également reporté sur la figure 4.19 les données expérimentales obtenues précédemment au laboratoire FAST sur des solutions de PIB/Toluène [65]. Rappelons que ces données expérimentales ont été obtenues soit avec des observations par caméra IR (donc uniquement sensible aux variations de température), soit par suivi de traceurs avec une résolution ne permettant pas de descendre à des vitesses inférieures à 0.1 mm/s. Ces résultats sont cohérents avec l'étude thermique mais il reste à comprendre pourquoi les expériences avec suivi de traceurs n'ont pas permis de mettre en évidence la convection solutale. La seule comparaison des seuils n'est pas suffisante. La simulations des cas tests permet de comparer les grandeurs caractéristiques solutales et thermiques.

4.4.3 Problème solutal : simulation des cas tests n° 1 et 2

La simulation de cas expérimentaux dans le régime thermique a été présentée en première partie (section 2.6). Nous réalisons dans cette section les simulations propres au régime solutal. L'objectif est la comparaison des temps d'apparition d'un état convectif obtenu avec les deux modèles (thermique et solutal), ainsi que des vitesses engendrées. Pour des raisons de cohérence des résultats, toutes les simulations sont bi-dimensionnelles et effectuées avec le code de calcul en formulation volumes-finis.

Les paramètres adimensionnels concernant les cas expérimentaux sont donnés en section 4.1. Brièvement, le cas n° 1 correspond à une épaisseur de 1 mm et une viscosité de 1 mPa.s ($\varphi_{si} = 0.994$) tandis pour le cas n° 2, $e = 8$ mm et $\mu = 21.5$ mPa.s ($\varphi_{si} = 0.953$).

Dans la configuration physique, ces deux cas sont très instables du point de vue des instabilités de Bénard Marangoni. Le tableau 4.3 récapitule les caractéristiques des cas simulés ainsi que les échelles caractéristiques. Les rapports Ra/Ra_c et Ma/Ma_c y sont aussi (à viscosité donnée).

Caractéristiques	Cas n° 1	Cas n° 2
e_i (mm)	1	8
μ_i (mPa.s)	1	21.5
φ_{si}	0.994	0.953
$\tau_{sol} = e_i^2/D$ (s)	1×10^4	6.4×10^5
$\mathcal{V}_{sol} = D/e_i$ (mm/s)	1×10^{-4}	1.3×10^{-5}
v_{evap} (mm/s)	3×10^{-4}	3×10^{-4}
Ma	9.9×10^5	2.5×10^7
Ra	9.2×10^4	1.5×10^8
Sc	1.1×10^4	2.3×10^5
Pe _{int}	3	24
Ma/Ma _c	4.4×10^3	1×10^5
Ra/Ra _c	4	200

Tableau 4.3 – Caractéristiques solutales et échelles des différents cas. τ et \mathcal{V} sont respectivement les échelles de temps et de vitesse du modèle solutal.

On a déjà vu que le cas n° 1 se situe a proximité de la zone de stabilité d'une configuration RB : $\frac{Ra}{Ra_c} \sim 4$. Du point de vue d'un écoulement de type BM, on estime le nombre de Marangoni critique tel que $\frac{Ma}{Ma_c} \sim 4400$. Pour le cas n° 2 les rapports sont tels que $\frac{Ra}{Ra_c} \sim 222$ et $\frac{Ma}{Ma_c} \sim 10^5$. La comparaison des rapports $\frac{Ra}{Ra_c}$ et $\frac{Ma}{Ma_c}$ n'est pas suffisante pour dire quel effet est prépondérant mais les simulations ont montré que ces deux cas sont dominés par l'effet Marangoni.

Les aspects thermiques ayant déjà été étudiés (cf. Touazi *et al.* [64] et la partie I de cette thèse), on commence par détailler ci-dessous les résultats relatifs au problème solutal.

La simulation de ces deux cas nécessite un ajustement des paramètres numériques. Pour la simulation du cas n° 1 ces derniers ont été donnés en section 4.2.3 (page 105). Le cas n° 2 utilise les même paramètres, seul le pas de temps est modifié. Il est initialement tel que $\Delta t = 10^{-9}$ puis il est lentement relâché jusqu'à $\Delta t = 10^{-8}$ dès lors que la convection apparaît.

Cas n° 1

Le temps critique à déjà été estimé en section 4.2. On va s'intéresser dans cette section à l'influence de la viscosité et aux structures convectives. L'amplitude de la perturbation est $a = 10^{-9}$.

Champs de vitesse et de concentration – influence de la viscosité.

Influence de la viscosité

La figure 4.20(a) présente, au cours du temps, les évolutions de la vitesse. Si l'on compare les différentes évolutions pour des viscosités variable et constante, la première observation est que les temps critiques d'apparition de la convection sont très proches : t_c obtenu en viscosité constante est légèrement plus petit que celui obtenu en viscosité variable : 1.88×10^{-4} comparé à 1.91×10^{-4} mais l'écart n'est pas significatif. Ensuite, pour des temps $t < 5 \times 10^{-2}$ les comportements sont très semblables. La viscosité n'a pas le temps de varier de façon significative, elle reste voisine de la viscosité initiale (figure 4.20(b)). Pour des temps $t > 0.25$, l'évolution se fait de manière soudaine. La présence de fortes viscosités fige le système, ce qui explique le retour rapide à un état diffusif.

Evolution du champ de concentration

La figure 4.21 présente l'évolution du champs de concentration, plus précisément de la fraction volumique de solvant, pour des temps $t \leq 5 \times 10^{-3}$. Durant cette gamme de temps, l'interface descend selon la formule :

$$e(t) = 1 - Pe_{\text{int}} \times t.$$

Pour un temps $t \leq 5 \times 10^{-3}$, on a donc $e(t) = 0.985$. La plage de couleurs est telle que le blanc représente les fractions volumiques en solvant élevées tandis que les couleurs froides distinguent les fractions volumiques les plus faibles. Comme estimé par les différents critères, la convection apparaît pour un temps compris entre $t = 2 \times 10^{-4}$ et $t = 4 \times 10^{-4}$. L'état diffusif stratifié est déstabilisé à proximité de la surface libre : de

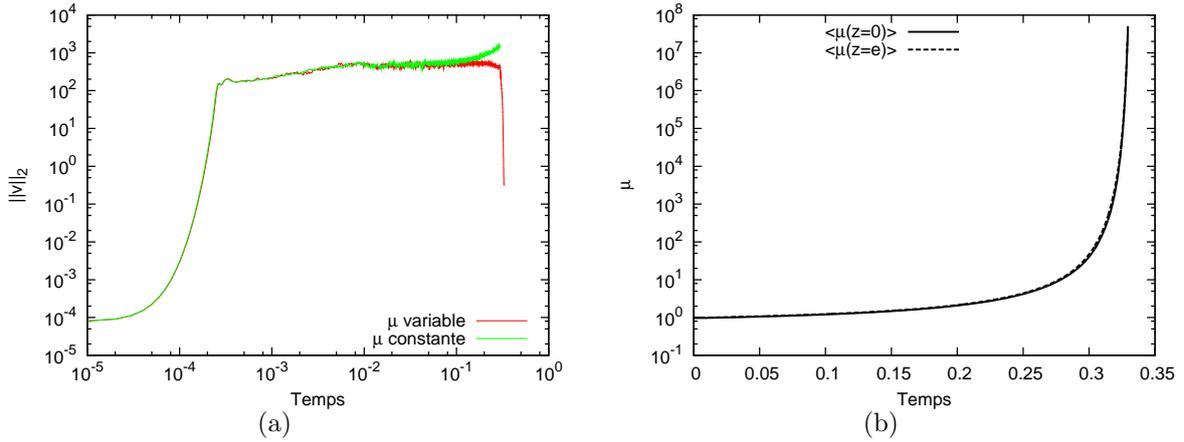


Figure 4.20 – Cas n° 1. (a) Evolution temporelle de $\|v\|_2$. Comparaison des viscosités constante (vert) et variable (rouge). (b) Evolution des viscosités moyennes $\langle \mu \rangle$ en surface libre ($z = e(t)$) et au fond de la cavité ($z = 0$). ($A_i = 10$ et $a = 10^{-9}$.)

petites poches plus concentrées en polymère, se développent. A ce stade, le champ de concentration est déstabilisé sur environ 10% de l'épaisseur. Avec le temps, ces structures se développent. L'organisation de l'écoulement fait apparaître des panaches de plus en plus importants qui, pour un temps voisin de 5×10^{-3} , occupent quasiment toute l'épaisseur de la couche fluide.

Dès que les structures atteignent une taille suffisante (ici notamment à partir de $t = 1 \times 10^{-3}$), on observe deux types de structures : les panaches de concentrations précédemment évoqués ainsi que de plus petites structures (comparées aux panaches) qui continuent de se développer à proximité de la surface libre et qui viennent alimenter les panaches.

L'évolution temporelle du champ de concentration pour des temps allant de $t = 6 \times 10^{-3}$ jusqu'à $t = 2.5 \times 10^{-1}$ est présenté en figure 4.22. Le temps limite de validité du modèle est $t_{lim} \simeq 0.32$ (par rapport à la concentration surfacique). La diminution de l'épaisseur est visible.

Longueur d'onde de l'écoulement

L'observation des champs de concentrations (figure 4.21 et 4.22), fait apparaître deux longueurs d'ondes. Une pour les panaches (notée λ_{max}) et une pour les petites structures visibles près de la surface libre (notée λ_{min})

La figure 4.23 présente pour différents temps ($t = 6 \times 10^{-4}$, $t = 3 \times 10^{-3}$ et $t = 1 \times 10^{-1}$) les valeurs du champ de concentration relevées en surface libre. Pour un temps $t = 6 \times 10^{-4}$, on observe que la concentration fluctue autour d'une valeur de fraction volumique voisine de 0.99384. Si l'on se réfère au champ de concentration associé a ce temps, on constate que la différence de taille entre les grosses et petites structures n'est pas encore conséquente. Pour des temps plus longs, notamment pour $t \geq 3 \times 10^{-3}$, de petites fluctuations de concentration sont toujours observables et on commence aussi à distinguer un profil d'aspect sinusoïdal caractérisant une autre longueur d'onde de l'écoulement (ici voisine de l'unité), qui correspond aux plus grosses structures. Cette longueur d'onde maximale des structures augmente avec le temps et pour un temps $t = 1 \times 10^{-1}$, elle est de l'ordre de 2. On peut noter que des fluctuations autour de ce profil restent visibles.

Afin d'estimer la longueur d'onde maximale λ_{max} , une transformation de Fourier est

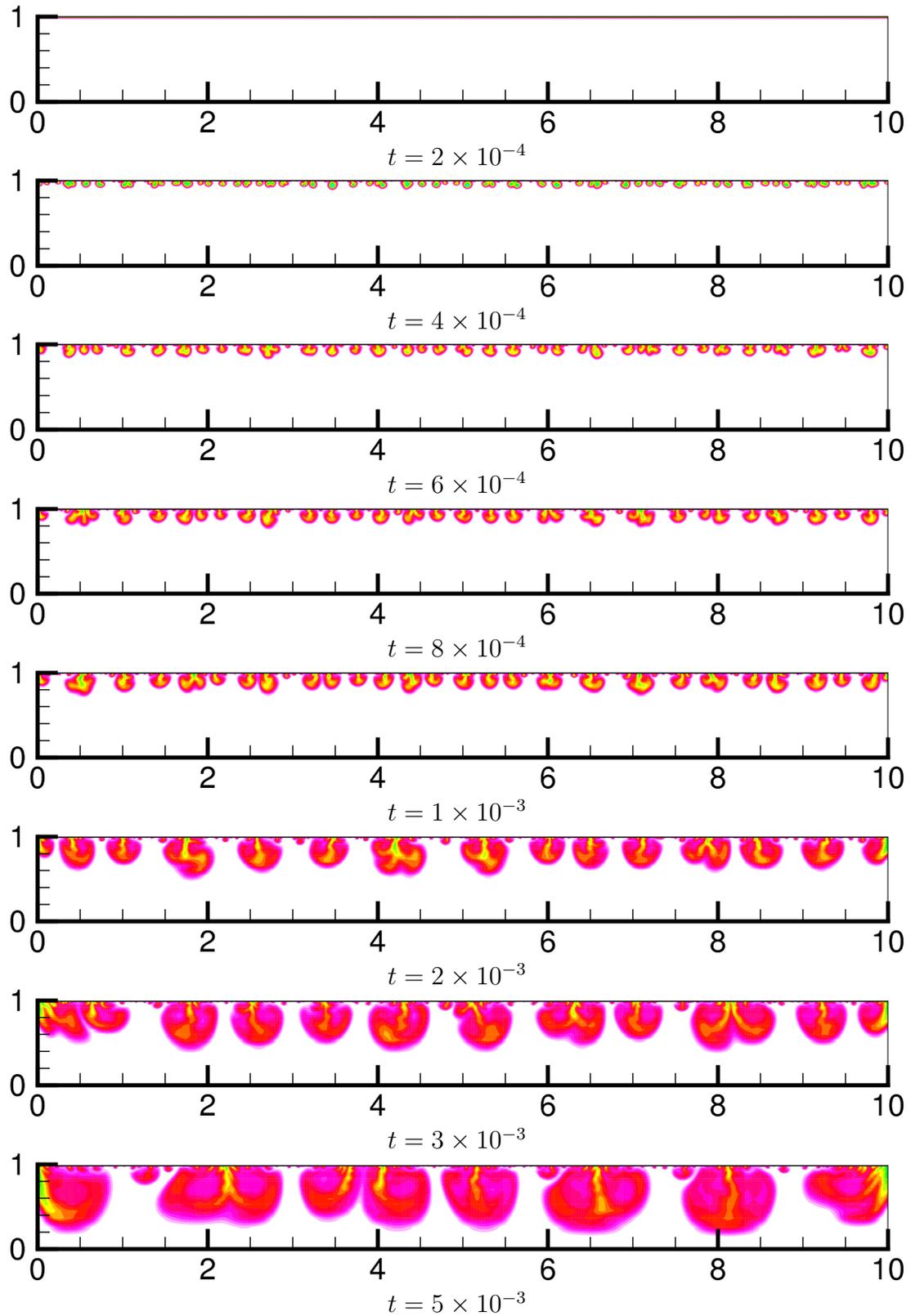


Figure 4.21 – Cas n° 1. Evolution temporelle de la fraction volumique de solvant mise à l'échelle entre les valeurs minimale et maximale pour chaque temps. (Blanc : fortes concentrations, bleu : faibles concentrations. $A_i = 10$ et $a = 10^{-9}$.)

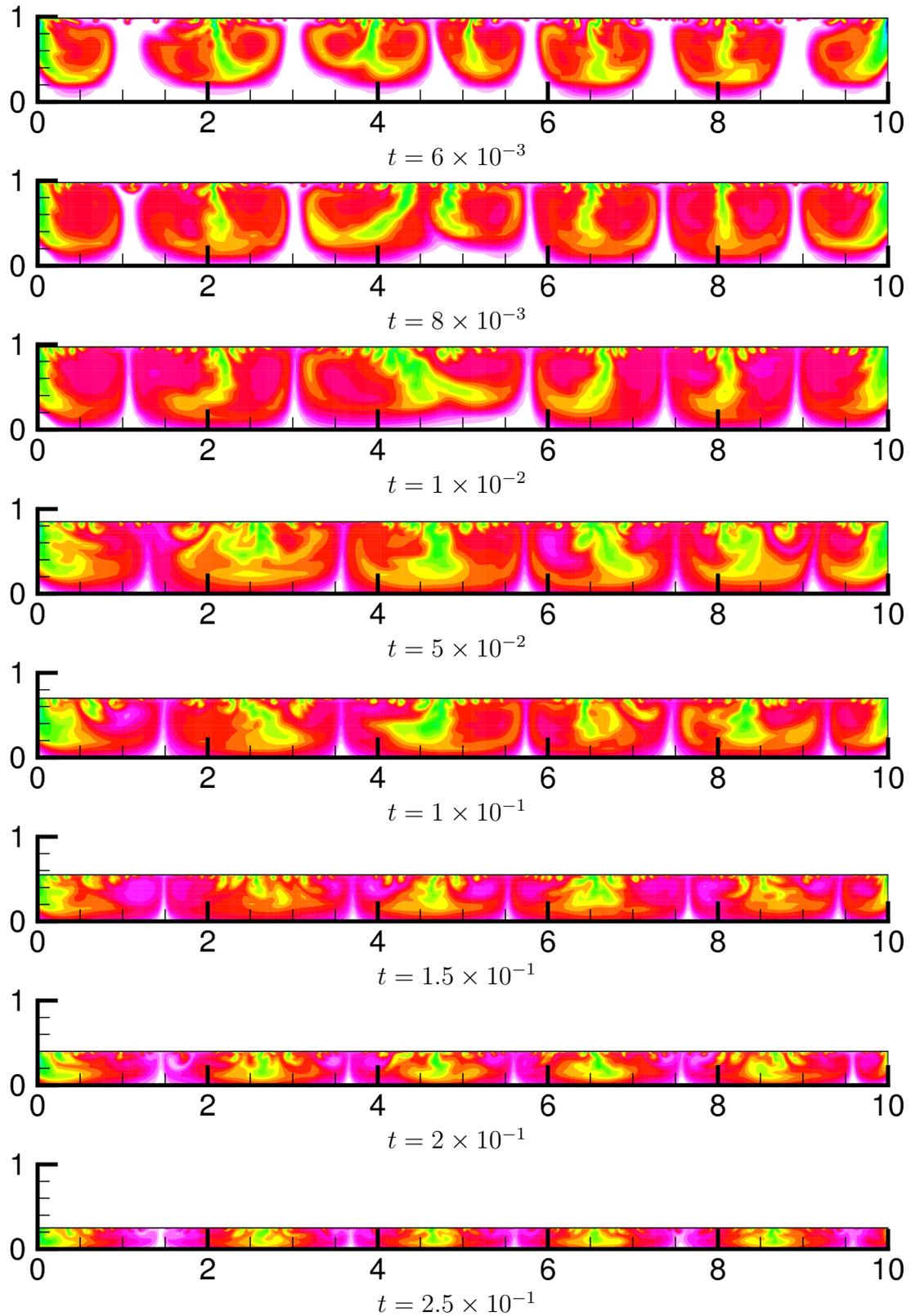


Figure 4.22 – Cas n° 1. Evolution temporelle de la fraction volumique de solvant mise à l'échelle entre les valeurs minimales et maximales pour chaque temps. (Blanc : fortes concentrations, bleu : faibles concentrations. $A_i = 10$ et $a = 10^{-9}$.)

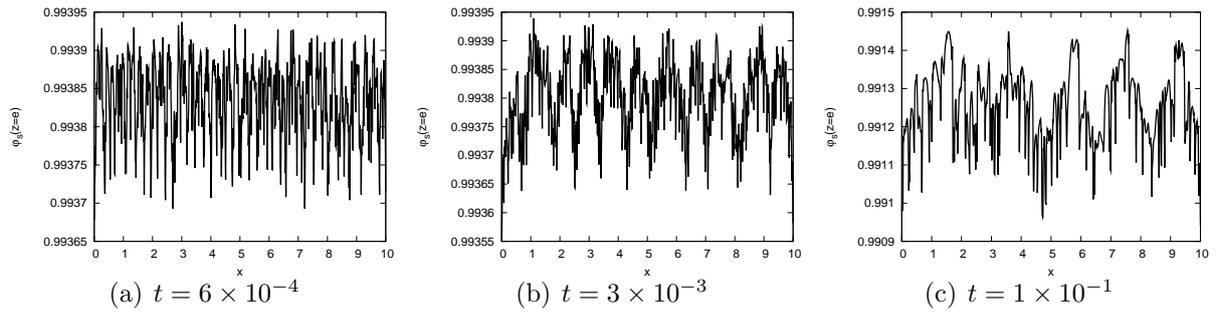


Figure 4.23 – Cas n° 1. Profils de fraction volumique de solvant au niveau de l’interface pour différents temps : $t = 6 \times 10^{-4}$, $t = 3.4 \times 10^{-3}$ et $t = 1 \times 10^{-1}$. ($A_i = 10$ et $a = 10^{-9}$)

appliquée sur le profil de concentration relevé au niveau de la surface libre. Les grandes échelles sont relevées en observant l’évolution de la densité spectrale d’énergie (DSE) en fonction de la longueur d’onde. La figure 4.24 présente les DSE associées aux courbes précédentes (figure 4.23). Pour un temps $t = 6 \times 10^{-4}$, l’observation de la DSE fait apparaître une gamme de longueurs d’ondes réparties autour de $\lambda = 0.3$. Pour les temps plus longs, et une fois que les structures se sont développées dans l’épaisseur, on commence à observer une longueur d’onde dominante, respectivement de l’ordre de 1 et 2 pour des temps de $t = 3 \times 10^{-3}$ et $t = 1 \times 10^{-1}$. L’évolution temporelle de la longueur d’onde maximale, qui représente les plus grosses structures de l’écoulement est présenté en figure 4.25. Assez rapidement, pour un temps voisin de $t = 5 \times 10^{-3}$, la longueur d’onde maximale de l’écoulement est voisine de 2. Elle se stabilise pour des temps supérieurs à $t = 1 \times 10^{-2}$.

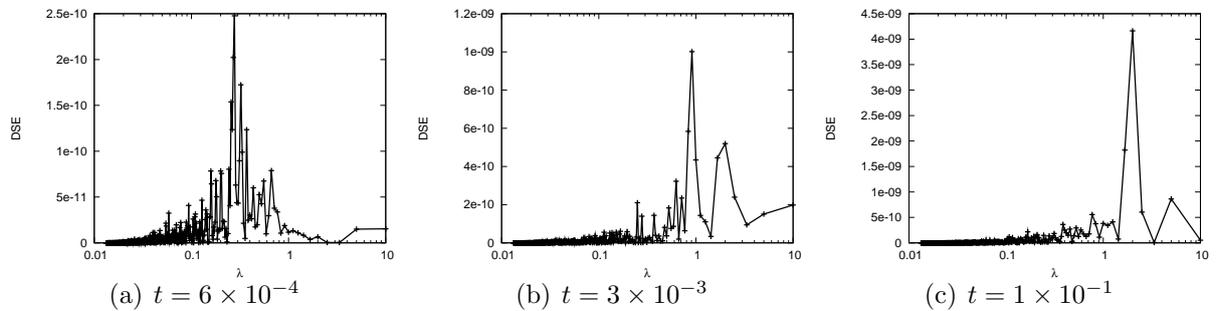


Figure 4.24 – Cas n° 1. Densité spectrale d’énergie (DSE) en fonction de la longueur d’onde λ pour différents temps : $t = 6 \times 10^{-4}$, $t = 3.4 \times 10^{-3}$ et $t = 1 \times 10^{-1}$. ($A_i = 10$ et $a = 10^{-9}$)

Domaine de validité de l’hypothèse de surface plane

Comme nous l’avons indiqué en section 3.1, nous testons a posteriori l’hypothèse de surface plane. Le terme de contrainte normale évalué numériquement est traduit sous forme de déflexion de la surface. La contrainte normale à l’interface est équilibrée soit par la pression de Laplace soit par le terme lié à la gravité. On travaille temporairement en grandeurs dimensionnées. En deux dimensions, l’équilibre entre le tenseur des contraintes et la pression de Laplace se traduit par deux équations couplées (Wehausen et Laitone [67]). Avec l’hypothèse de surface libre plane, la contrainte normale σ_{zz} à

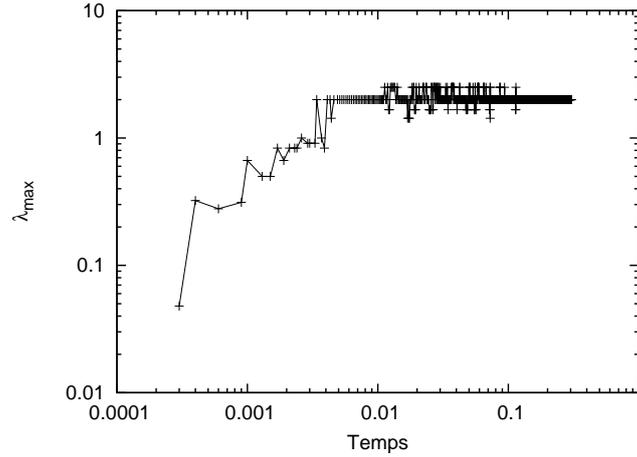


Figure 4.25 – Cas n° 1. Evolution temporelle du nombre de structures dans la cavité.

l'interface s'écrit :

$$\sigma_{zz} = -p + 2\mu \frac{\partial w}{\partial z}. \quad (4.13)$$

La pression de Laplace, notée Δp_L , est donnée par le saut de pression au niveau de l'interface :

$$\Delta p_L = p_{int} - p_{\infty} = \sigma \frac{1}{R} \quad (4.14)$$

avec σ la tension de surface et R le rayon de courbure. La courbure est estimée par

$$\frac{1}{R} \sim \frac{\Delta h_L}{\lambda^2}. \quad (4.15)$$

avec λ la longueur d'onde et Δh_L la déflexion de l'interface. Cette approximation est valable uniquement pour des faibles pentes. La déflexion de l'interface lié à la pression de Laplace ($\sigma_{zz} = \Delta p_L$) est donc :

$$\Delta h_L \sim \sigma_{zz} \frac{\lambda^2}{\sigma} \quad (4.16)$$

Si l'on équilibre la contrainte par la gravité ($\sigma_{zz} = \rho g \Delta h_G$), on a :

$$\Delta h_G = \sigma_{zz} \frac{1}{\rho g} \quad (4.17)$$

Lorsque l'on passe en grandeurs sans dimension (notées avec “*”), on obtient :

$$\Delta h_L^* \sim \sigma_{zz}^* \frac{\lambda^{*2}}{\sigma} \times \frac{\rho D^2}{e_i} \quad \text{et} \quad \Delta h_G^* \sim \sigma_{zz}^* \frac{1}{g} \times \frac{D^2}{e_i^3} \quad (4.18)$$

On estimera valide en première approximation l'hypothèse d'interface rigide si Δh_L ou Δh_G est inférieur à 1% de l'épaisseur courante. On note t_R le temps en deça duquel l'hypothèse est valide. Pour le cas n° 1, on obtient $t_R \simeq 0.15$. Il faut comparer ce temps au temps de transition $t_c \sim 10^{-4}$, et au temps limite de validité du modèle $t_{lim} \sim 0.3$. Le modèle est valide sur environ la moitié de la durée de la convection. En temps dimensionné, cela représente 25 minutes.

Cas n° 2

La stratégie déployée est la même que pour le cas n° 1. Les résultats sont présentés de façon plus succincte : la comparaison viscosité constante/variable ne sera pas effectuée sur des temps longs. En effet la simulation de ce cas est extrêmement coûteuse (prohibitif!) en temps et n'est pas aboutie⁵. Néanmoins, un temps critique ainsi que des vitesses et longueurs d'ondes peuvent être estimées. Notons simplement qu'une viscosité constante réduit le temps critique d'environ 10%. Dans la suite, nous ne travaillerons qu'avec une viscosité variable.

L'évolution de la vitesse est présentée en figure 4.26(a). Le régime quasi-stationnaire est obtenu pour un temps de 0.002. Ensuite la vitesse relaxe doucement. Les simulations vont jusqu'à un temps de 0.02. Le temps de transition est $t_c \simeq 10^{-5}$. Si l'on observe pour les mêmes temps l'évolution des viscosités moyennes en $z = 0$ et $z = e$ (figure 4.26(b)), on constate un facteur 10 entre la viscosité à $t = 0.02$ et la viscosité initiale.

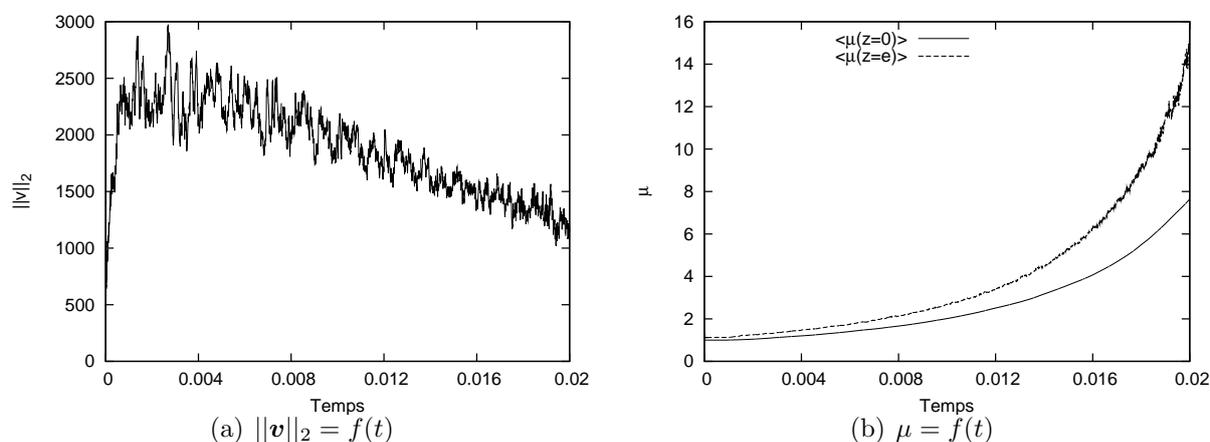


Figure 4.26 – Cas n° 2. Evolution temporelle de la vitesse et viscosité. $A_i = 10$, et $a = 10^{-9}$

Les champs de concentration après la déstabilisation de l'état diffusif sont présentés en figure 4.27. Des panaches de concentrations se forment jusqu'à occuper toute l'épaisseur de la solution. Leurs évolutions dans la suite forme des structures assez irrégulières.

⁵environ 30×48 heures pour évaporer la moitié de la solution. Le processeur est un Intel Core 2 Duo cadencé à 3.16 GHz

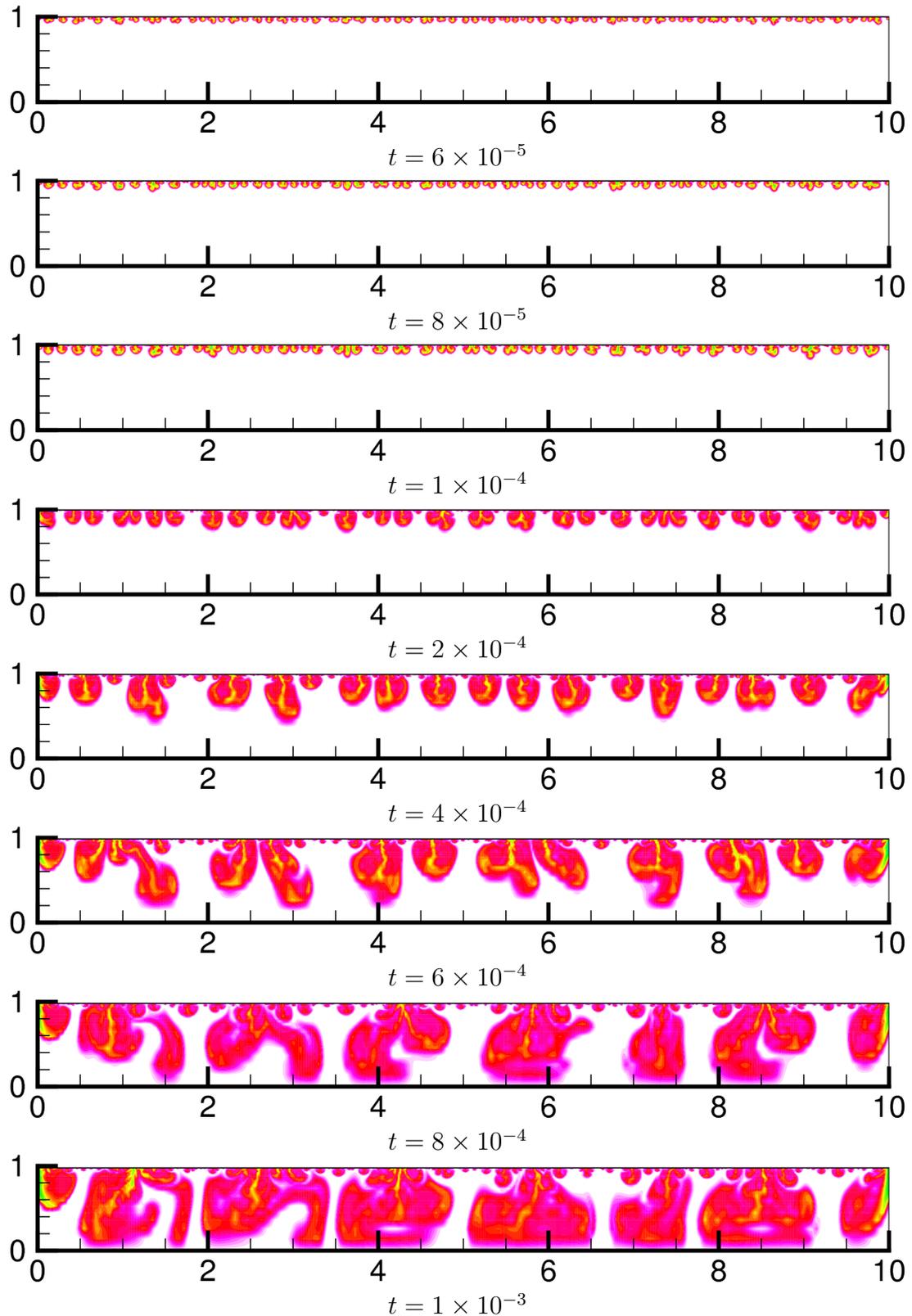


Figure 4.27 – Cas n° 2. Evolution temporelle de la fraction volumique de solvant mise à l'échelle entre les valeurs minimale et maximale pour chaque temps. (Blanc : fortes concentrations, bleu : faibles concentrations, $A_i = 10$ et $a = 10^{-9}$.)

Pour des temps supérieurs (figure 4.28), des structures « robustes », dans le sens où l'on peut observer la conservation de la longueur d'onde, sont obtenues. Une transformée de Fourier des champs de concentration donne une longueur d'onde de 2.5 fois l'épaisseur.

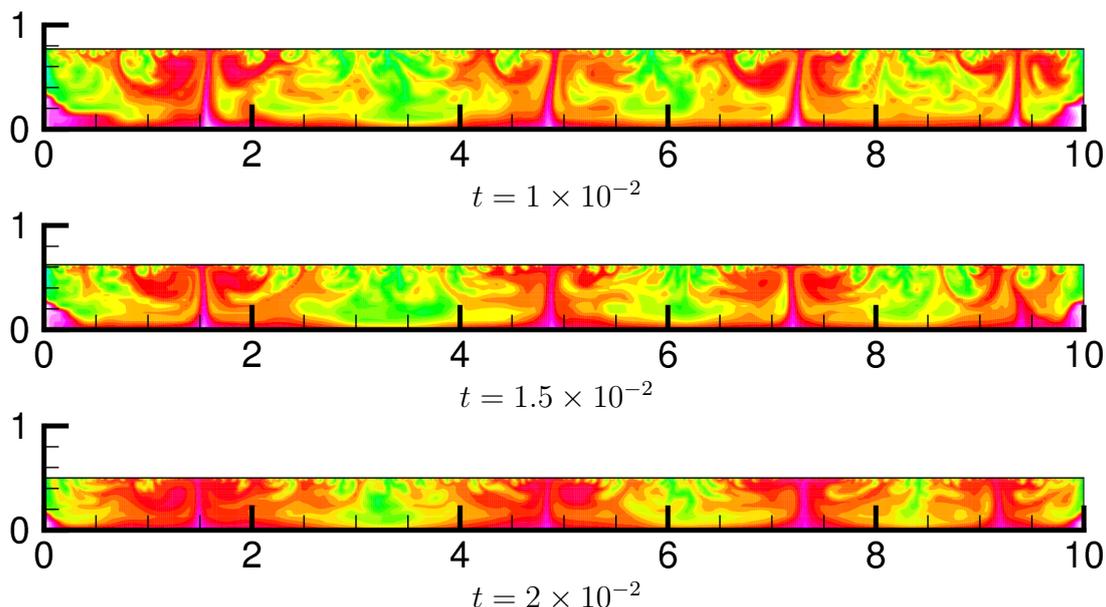


Figure 4.28 – Cas n° 2. Evolution temporelle de la fraction volumique de solvant mise à l'échelle entre les valeurs minimale et maximale pour chaque temps. (Blanc : fortes concentrations, bleu : faibles concentrations, $A_i = 10$ et $a = 10^{-9}$.)

La transformée de Fourier du champ de concentration en surface libre permet d'obtenir la longueur d'onde de l'écoulement. On a dans ce cas $\lambda = 2.5$ pour des temps $t \geq 0.01$.

Le temps de validité de l'interface rigide est ici $t_R \simeq 0.02$. La durée de la convection n'est pas disponible ici, mais on peut comparer t_R à t_c ($t_R \simeq 2000 \times t_c$). Exprimé en temps dimensionné, cela représente 3 heure et demi. Même si c'est court comparé à la durée du séchage, cela autorise la comparaison avec le modèle thermique (simulé en partie I).

4.4.4 Comparaison thermique/solutal

Nous avons à l'issue de cette analyse les éléments pour comparer la convection engendrée par les gradients thermiques ou solutaux liés à l'évaporation du solvant.

Avant de comparer les cas n° 1 et 2, nous pouvons regarder les différents temps sur lesquels les transferts de chaleur et de masse sont effectifs. Le temps t_h pour obtenir une température homogène dans la couche liquide a été évalué en section 2.2 (page 38). Le temps limite de validité du modèle solutal est noté t_{lim} et correspond à $\max \varphi_s(t_{lim}) = 0.4$. (Le temps nécessaire à évaporer tout le solvant est évidemment plus grand.) Ces temps, ainsi que le rapport t_{lim}/t_h en fonction de l'épaisseur de la solution sont présentés en figure 4.29.

Un recouvrement entre les deux modèles est observé. Pour une épaisseur de 1 mm, la plage sur laquelle les transferts de chaleur et de masse coexistent est de quelques minutes (200 secondes). Elle peut être considérée comme petite comparée au temps nécessaire à l'évaporation de tout le solvant (environ trois jours). Plus l'épaisseur est faible, donc

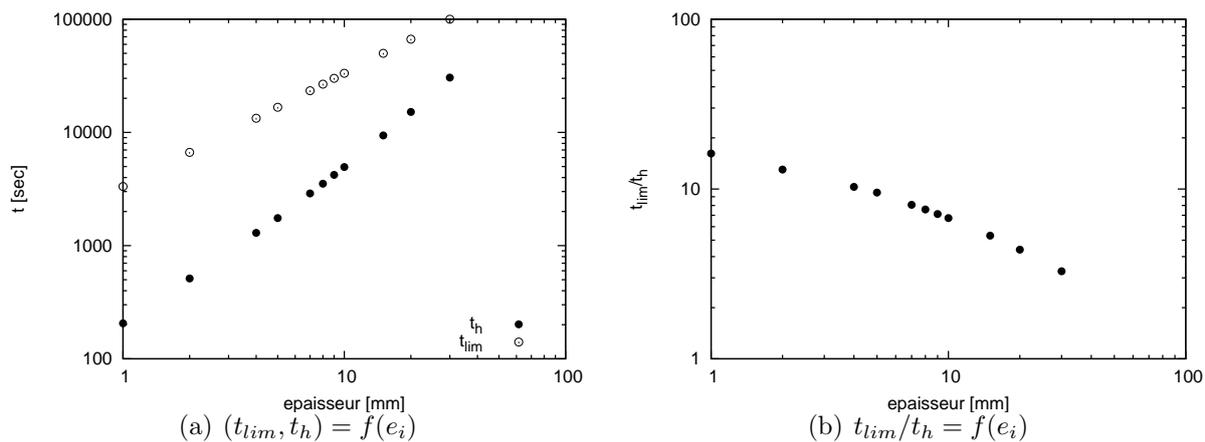


Figure 4.29 – t_h et t_{lim} en fonction de l'épaisseur initiale de la solution

l'homogénéisation de la couche de liquide rapide, plus le temps durant lequel les effets thermiques sont prépondérants est négligeable.

Cas 1

Le tableau 4.4 compare, pour le cas n° 1, les grandeurs caractéristiques obtenues pour les problèmes thermique et solutal. Les résultats expérimentaux (Exp.) sont aussi rappelés.

On constate, tout d'abord que les temps d'apparition de l'état convectif sont très proches, de l'ordre de la seconde. Ce résultat n'était pas a priori évident puisque les temps caractéristiques thermique τ_{th} et solutal τ_{sol} sont très différents (trois ordres de grandeur). Dans le problème thermique, le gradient de température est nul pour des temps supérieurs à 200 secondes.

L'analyse des vitesses engendrées conforte la présence d'un régime thermique dominant en début de séchage. En effet, on observe une vitesse induite par les effets thermiques plus de vingt fois supérieure à celle dûe aux effets solutaux. C'est pour cette raison que les effets solutaux ne sont pas détectés dans les expériences décrites (déjà analysé dans [65]) et que les effets thermiques sont principalement responsables des motifs convectifs observés en début de séchage. Par contre des expériences réalisées par Bassou et Rharbi [2], dont l'instrumentation permet de détecter des vitesses plus faibles mettent en évidence la convection solutale. Le dessin présenté en figure 4.30 essaie de représenter les grandeurs

	solutal	thermique	Exp.
Vitesse	0.05 mm/s	1.4 mm/s	/
t_c	0.81 à 2.24 s	0.6 à 2.5 s	≤ 1 s
λ	2 mm	3 à 5 mm	2 à 4 mm

Tableau 4.4 – Cas n° 1. Comparaison des grandeurs caractéristique obtenues avec les modèles thermique et solutal.

caractéristiques de chaque phénomène (thermique et solutal) en fonction du temps.

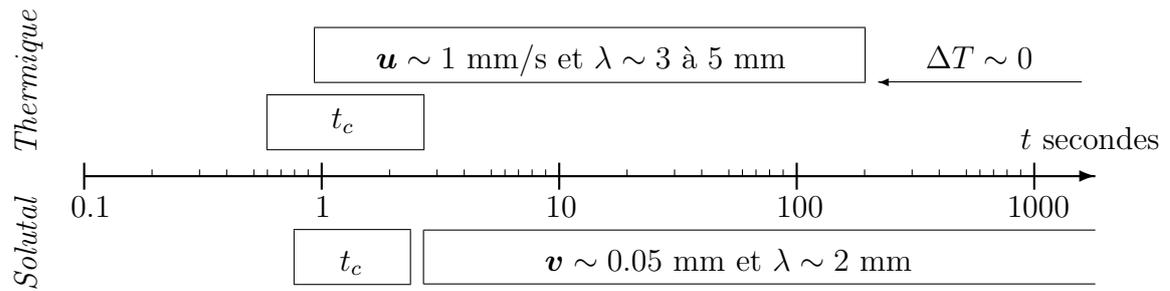


Figure 4.30 – Cas n° 1. Comparaison des temps d’apparition ainsi que des vitesses et longueurs d’ondes engendrées par les deux modèles. Le temps de recouvrement entre les deux phénomènes de transferts est très faible, quelques secondes, comparé à la plage de temps parcourue (3000 secondes).

Cas 2

Le tableau 4.5 permet de comparer les temps de transition, vitesses et longueurs d’onde obtenues avec le modèle thermique, le modèle solutal et dans les expériences effectuée au FAST [65]. Les longueurs d’onde sont toutes du même ordre, même si les deux modèles ont tendance à les surestimer légèrement par rapport à l’expérience. Il en va de même pour le temps critique. Par contre, la vitesse prédite par le modèle thermique est d’une part dix fois supérieure à celle tirée du modèle solutal, et d’autre part du même ordre de grandeur que la vitesse expérimentale. Ce dernier paramètre (la vitesse) permet de conclure que les cellules observées dans les expériences du FAST sont bien d’origines thermique.

	solutal	thermique	Exp.
Vitesse	0.032 mm/s	0.36 mm/s	0.1 à 0.3 mm/s
t_c	3.3 à 7.1 s	4.5 à 79 s	2 à 7 s
λ	20 mm	18 à 21 mm	5 à 15 mm

Tableau 4.5 – Cas n° 2. Comparaison des grandeurs caractéristique obtenues avec les modèles thermique et solutal.

La comparaison schématique des différentes grandeurs caractéristiques est présentée en la figure 4.31

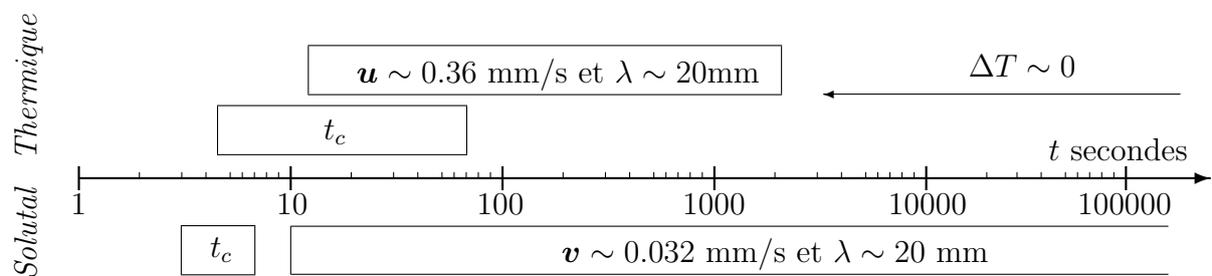


Figure 4.31 – Cas n° 2. Comparaison des temps d’apparition ainsi que des vitesses et longueurs d’ondes engendrées par les deux modèles.

4.5 Synthèse de la partie solutale

Dans cette partie du mémoire, nous avons étudié un problème de convection solutale. Un modèle mono-couche, basé sur des observations expérimentales a été mis en place. Un certain nombre d'hypothèses a été établi. De manière similaire au modèle thermique étudié dans la première partie de ce travail, l'écoulement dépend de quatre paramètres sans dimension auxquels nous devons ajouter la concentration initiale de la solution, définie par la fraction volumique de solvant. La viscosité peut être choisie constante (égale à la viscosité initiale) ou variable et déduite de la concentration selon une loi empirique.

Afin de résoudre le système d'équation obtenu, un code de calcul a été utilisé. La validation s'est faite via une comparaison avec une solution analytique.

Une fois ces tests numériques complétés, un premier travail a porté sur une étude dans l'espace des paramètres adimensionnels. L'effet Marangoni et la poussée d'Archimède ont été découplés. L'influence modérée des conditions initiales sur l'écoulement a permis de mener une étude de stabilité pertinente. Pour plusieurs concentrations initiales nous avons établi les seuils de transition diffusif-convectif dans le plan des paramètres (Pe_{int}, Ma) ou (Pe_{int}, Ra) . L'influence du nombre de Schmidt a pu être considérée comme négligeable. Des comparaisons entre viscosité constante et variable ont été faites. Dans l'espace des paramètres sans dimension et avec la loi de viscosité choisie, les seuils obtenus sont génériques pour ce type de problème à flux imposé.

De cette étude systématique, nous avons pu établir une carte de stabilité de l'écoulement (pour des instabilités d'origine solutale) correspondant à l'évaporation d'une solution PIB/Toluène dont la vitesse d'évaporation est $v_{evap} = 3 \times 10^{-7}$ m/s. Dans le plan des paramètres physiques nous avons tracé la carte de stabilité de l'écoulement vis-à-vis de l'effet Marangoni et de la poussée d'Archimède. Cette carte a pu être comparée à celle obtenue avec le modèle thermique. Elle a permis de mettre en évidence, comme dans le cas d'autres études [45], la prépondérance de l'effet Marangoni d'origine solutale par rapport aux autres effets (poussée d'Archimède solutale et effets thermiques). L'effet Marangoni solutal se manifeste pour des épaisseurs de l'ordre de 0.1 mm et il faut une épaisseur voisine de 1 cm pour observer la poussée d'Archimède solutale et les effets thermiques.

Une deuxième étude a porté sur les simulations numériques correspondant aux cas expérimentaux (effectués au FAST pour une solution PIB/Toluène). L'observation des grandeurs caractéristiques de l'écoulement (temps de transition, longueur d'onde et vitesse) a permis de mettre en avant deux points essentiels. Tout d'abord, la supposition visant à découpler les phénomènes thermique et solutal en raison de leurs échelles de temps caractéristiques a été affaiblie. En effet, pour les deux cas simulés, les temps de transition diffusif-convectif sont du même ordre. Les phénomènes thermique et solutal cohabitent en début de séchage. Néanmoins, les plages de temps pendant lesquelles s'opèrent les transferts de chaleur et de masse sont très différentes. La thermique joue au maximum sur quelques minutes tandis que les variations de concentration peuvent s'étaler sur plusieurs jours. En ce sens, le découplage des effets, initialement motivé par l'étude séparée des deux phénomènes de transport, se révèle « naturel ». L'observation des vitesses caractéristiques permet également de considérer séparément les deux effets. Au moins un ordre de grandeur est obtenu entre les vitesses issues des deux modèles, la vitesse thermique étant de l'ordre de celle relevée expérimentalement (dans le cas d'une solution PIB/Toluène, FAST). Nous

en avons donc déduit que les structures obtenues en début de séchage, lorsque les effets thermique et solutal sont couplés, sont dus à des variations de température. Une convection d'origine solutale ne peut être observée que si l'on se situe sous le seuil de stabilité thermique, ce qui est le cas dans les expériences de Bassou et Rharbi [2].

En parallèle, au cours de cette étude, l'hypothèse forte d'interface indéformable a été testée. Il s'avère qu'elle ne peut plus être pertinente au bout d'un certain temps. Cela ne remet cependant pas en cause la détermination des seuils ni les comparaisons thermique/solutal des cas physiques. La prise en compte d'une interface déformable sera évoquée dans les perspectives.

Conclusion générale et perspectives

Au cours de cette thèse, nous avons étudié numériquement le séchage d'une solution solvant/polymère et plus précisément les instabilités qui découlent de l'évaporation du solvant en surface libre. En accord avec les résultats expérimentaux obtenus lors du séchage d'une solution de PIB/Toluène, les transferts de chaleur et de masse, mis en jeu pendant l'évaporation, ont été découplés. Deux modèles, l'un traitant des aspects thermiques, l'autre des aspects solutaux ont servi à cette analyse. Nous nous sommes intéressés à la transition diffusif-convectif d'origine thermique ou solutale. Dans les deux cas, l'effet Marangoni et/ou la poussée d'Archimède peuvent déstabiliser l'état diffusif transitoire.

Une synthèse des résultats ayant été présentée à la fin des parties thermique et solutale, nous reprenons ici simplement les principaux points.

Les problèmes transitoires sont sensibles aux conditions initiales. Numériquement, les erreurs liées aux choix des discrétisations (temporelle et spatiale) viennent perturber l'état de base. Afin d'éviter de genre de comportement que l'on ne contrôle pas, nous avons choisi de superposer (au temps initial) une perturbation (définie par son amplitude et sa structure spatiale) sur le champ scalaire de température (ou de concentration). Le travail préliminaire a consisté à s'assurer que cette perturbation avait un impact modéré et quantifiable sur l'évolution temporelle du système.

Une fois ce travail accompli, nous nous sommes penchés sur les seuils de transition diffusif-convectif. Un critère sur la vitesse, traduisant une convection significative, a été choisi. Les zones de transition entre les états stable et instable, dans lesquelles la stabilité de l'écoulement dépend de la condition initiale, sont relativement étroites (par rapport à la gamme de paramètres parcourue) ; ce qui rend l'analyse de stabilité possible. Les temps de transition diffusif-convectif sont également sensibles aux conditions initiales mais de façon modérée en comparaison de la durée totale du processus.

La comparaison des seuils de stabilité tracés dans le plan des paramètres physiques, ici l'épaisseur et la viscosité de la solution (pour une solution PIB/Toluène), a mis en évidence la prépondérance de l'effet Marangoni d'origine solutale par rapport aux autres effets (thermique et poussée d'Archimède solutale). Néanmoins, ce résultat ne permet pas directement de comprendre pourquoi la convection solutale n'a pas été détectée lors des expériences de séchage d'une solution PIB/Toluène réalisées au FAST, et des simulations de cas tests ont été réalisées pour aller plus loin dans l'analyse.

Deux cas, dont les paramètres reflètent des configurations expérimentales, ont été simulés pour chaque modèle. La comparaison des grandeurs caractéristiques (temps de transition, longueur d'onde et vitesse) a permis de comprendre plus en détails le phénomène de séchage. Les temps de transition sont du même ordre de grandeur. Cependant, la plage de temps durant laquelle la thermique est active est petite comparée à celle pour laquelle on

observe une convection solutale. Les longueurs d'ondes sont aussi du même ordre de grandeur. La distinction entre les deux phénomènes vient de la vitesse. Les vitesses résultant du modèle solutal sont d'au moins un ordre de grandeur inférieur à celles issues du modèle thermique. Elles sont inférieures à la limite de détection de l'instrumentation utilisée. Il est alors normal que la convection solutale n'ait pas pu être détectée.

Ce travail numérique nous a donc permis d'apporter des éléments de réponse aux questions soulevées par les phénomènes couplés qui interviennent lors du séchage. En fonction des paramètres adimensionnés caractérisant le problème, et en fonction du temps, nous avons déterminé les phénomènes dominants : convection thermique et/ou solutale, induite par la poussée d'Archimède et/ou l'effet Marangoni.

Les perspectives de ce travail sont nombreuses.

Tout d'abord d'un point de vue numérique, il serait intéressant de comprendre l'origine de la perte d'ellipticité de l'opérateur polaire (associé à des conditions aux limites de type Neumann) lorsqu'il est discrétisé sur une grille de Gauss-Radau, et pourquoi le choix d'une grille, qui n'est pas optimale du point de vue de la théorie des méthodes pseudo-spectrales Chebyshev, permet de déplacer le problème vers de plus hautes fréquences de coupures. Nous rappelons que l'ellipticité d'un opérateur se traduit par un spectre de valeurs propres réelles. L'apparition de valeurs propres complexes conjuguées ne pose pas de problème du point de vue de l'implémentation mais on peut se demander qu'elle en est la signification physique.

L'étude des motifs convectifs 3D a montré que les cellules de convection obtenues n'étaient pas régulières. Dans des configurations géométriques similaires (cylindriques et de facteurs de forme modérés), mais en régime établi, différents auteurs ont montré que les cellules internes de l'écoulement s'organisent en hexagones réguliers. Une transition de cellules hexagonales à carrées est également observée. Bien que l'irrégularité des structures se retrouve également dans les observations expérimentales, pour quelles raisons n'observons nous pas de motifs réguliers ? Il serait intéressant d'approfondir cette question, et en particulier l'influence de la structure de la perturbation initiale. Dans cette optique, l'utilisation de paramètres permettant l'observation d'un régime quasi-stationnaire, dans lequel le temps caractérisant l'organisation des cellules serait bien plus court que le temps de relaxation de l'écoulement, permettrait peut être de comprendre la régularité des cellules. Dans un premier temps, afin d'éviter tout effet de confinement, l'utilisation d'un modèle semi-infini (dans les directions horizontales) pourrait être envisagé.

Cette étude repose sur un certain nombre d'hypothèses simplificatrices que nous avons précisées lors de la présentation des modèles, et qui peuvent être remises en cause pour certaines d'entre elles si l'on veut aboutir à une description plus fine des phénomènes. Tout d'abord le découplage des effets thermiques et solutaux a été réalisé au vu de la valeur importante du nombre de Lewis ($Le = 10^3$). Cependant l'étude réalisée montre que ce découplage peut être remis en cause car les temps de déclenchement de la convection sont qualitativement égaux dans les régimes thermique et solutal. Il serait donc intéressant

de développer une simulation qui prenne en compte les deux effets. On peut penser que les vitesses engendrées par la thermique seront toujours plus importantes et seront peu affectées par les vitesses solutale mais l'action réciproque des deux types d'écoulement risque de changer la dynamique. Une déstabilisation d'origine solutale pourrait jouer le rôle de perturbation des champs de vitesse et température en début de séchage. Il serait de même intéressant d'analyser la transition entre le régime dominé par la thermique et celui dominé par la convection solutale, lorsque la convection thermique décroît en fin du transitoire thermique.

D'autre part nous nous sommes limités à un modèle mono-couche, avec des coefficients d'échange (en thermique) ou un flux d'évaporation (en solutal) connus et constants sur toute la surface libre. Ceci peut être une approximation trop forte pour certaines configurations. Une autre hypothèse retenue est celle d'interface plane. Si elle se justifie dans le régime thermique, elle est plus sujette à caution en fin de régime solutal. Elle a cependant permis de simuler le début du régime solutal. Nous avons pu obtenir les seuils de transition diffusif-convectif. Nous avons également obtenu les temps de transition ainsi que l'évolution des vitesses et concentration dans les premiers temps du séchage. Néanmoins, l'augmentation de la viscosité et la diminution de l'épaisseur font qu'au bout d'un certain temps, cette hypothèse n'est plus valide. La prise en compte d'une interface déformable serait donc également une amélioration très intéressante du modèle. Si certaines observations expérimentales sont maintenant mieux comprises à la suite de cette étude, il reste des points à éclaircir.

Nous avons vu lors de la comparaison thermique/solutal que les longueurs d'ondes des deux régimes sont comparables. Elles dépendent toutes les deux de l'épaisseur initiale. (Pour le cas solutal cette information est à prendre avec prudence car on peut se trouver au delà des limites de validité du modèle.) Ceci est en accord avec les résultats de Bassou et Rharbi [2] qui ont observé une corrélation entre l'épaisseur initiale et la longueur d'onde de l'écoulement, pour des épaisseurs de solution inférieures à 1.4 mm. Il serait intéressant d'aller plus loin dans la comparaison avec les données expérimentales de ces auteurs. Pour les expériences de séchage de PIB/Toluène évoquées dans ce travail, on observe pour certaines configurations des plis sur le film sec, dont la longueur d'onde ne dépend plus de l'épaisseur initiale. Il serait donc intéressant d'étendre le domaine de validité du modèle, notamment par la prise en compte d'une interface déformable, pour voir si les observations expérimentales peuvent être interprétées comme la signature de la convection solutale ou si d'autres phénomènes sont à prendre en compte.

Annexe A

Compléments pour la résolution du système thermique

A.1 Algorithme de projection-diffusion

Le terme non linéaire **NL** est introduit dans le terme de forçage qui contient tous les termes connus à cette étape de la résolution (aux temps (n) et $(n - 1)$). Le gradient de pression est donnée par la relation :

$$\nabla p = -\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \text{Pr} \Delta \mathbf{u} + \mathbf{f}$$

En prenant la divergence du gradient de pression et en considérant que $\text{div} \mathbf{u}^{(n+1)} = 0$, la discrétisation temporelle nous donne :

$$\begin{aligned} \Delta p^{(n+1)} &= \text{div} \nabla p^{(n+1)} \\ &= \text{div} \left(-\frac{3\mathbf{u}^{(n+1)} - 4\mathbf{u}^{(n)} + \mathbf{u}^{(n-1)}}{2\Delta t} + \mathbf{f}^{(n)} \right) + \text{div} \Delta \mathbf{u}^{(n+1)} \\ &= \text{div} \left(-\frac{-4\mathbf{u}^{(n)} + \mathbf{u}^{(n-1)}}{2\Delta t} + \mathbf{f}^{(n)} \right) \end{aligned}$$

Pour résoudre cette équation de Poisson, nous avons besoin de conditions aux limites. Celles ci s'obtiennent en évaluant le produit scalaire du gradient de pression par la normale extérieure \mathbf{n} au domaine $\bar{\mathcal{D}}$. Pour cela nous avons besoin de la vitesse extrapolée au temps $(n + 1)$, notée $[\mathbf{u}]^{(n+1)}$.

$$\begin{aligned} \nabla p^{(n+1)} \cdot \mathbf{n} &= \text{Pr} \Delta [\mathbf{u}]^{(n+1)} \cdot \mathbf{n} + \mathbf{f}^{(n)} \cdot \mathbf{n} \\ &= -\text{Pr} \nabla \times (\nabla \times [\mathbf{u}]^{(n+1)}) \cdot \mathbf{n} + \mathbf{f}^{(n)} \cdot \mathbf{n} \end{aligned}$$

On obtient des conditions de Neumann pour ce problème de Poisson et on peut donc résoudre le terme de pression au temps $(n + 1)$.

A.2 Détails de la résolution dans l'espace spectral Fourier

Les variables de vitesses et de température sont exprimées sous la forme de séries de Fourier (relation 1.22). Dans ces conditions, et pour chaque variable du problème, on peut

écrire les équations de quantité de mouvement ainsi que l'équation de l'énergie pour la partie en cosinus d'une part (dénotée par \cdot^c) et la partie en sinus d'autre part (dénotée par \cdot^s) de chaque variable. On obtient un système de huit équations qui s'écrit de la manière suivante pour un mode m considéré

$$\left\{ \begin{array}{l} \left(\left(\Delta - \frac{1}{r} \right) - \text{Pr}^{-1} \frac{\partial}{\partial t} \right) u^{m,c} = \text{Pr}^{-1} \frac{\partial p^{m,c}}{\partial r} + \frac{2m}{r^2} v^{m,s} + \text{Pr}^{-1} f_r^{m,c} \quad (\text{A.1a}) \\ \left(\left(\Delta - \frac{1}{r} \right) - \text{Pr}^{-1} \frac{\partial}{\partial t} \right) u^{m,s} = \text{Pr}^{-1} \frac{\partial p^{m,s}}{\partial r} - \frac{2m}{r^2} v^{m,c} + \text{Pr}^{-1} f_r^{m,s} \quad (\text{A.1b}) \\ \left(\left(\Delta - \frac{1}{r} \right) - \text{Pr}^{-1} \frac{\partial}{\partial t} \right) v^{m,c} = \text{Pr}^{-1} + \frac{m}{r} p^{m,s} - \frac{2m}{r^2} u^{m,s} + \text{Pr}^{-1} f_\phi^{m,c} \quad (\text{A.1c}) \\ \left(\left(\Delta - \frac{1}{r} \right) - \text{Pr}^{-1} \frac{\partial}{\partial t} \right) v^{m,s} = \text{Pr}^{-1} - \frac{m}{r} p^{m,c} + \frac{2m}{r^2} u^{m,c} + \text{Pr}^{-1} f_\phi^{m,s} \quad (\text{A.1d}) \\ \left(\Delta - \text{Pr}^{-1} \frac{\partial}{\partial t} \right) w^{m,c} = \text{Pr}^{-1} \frac{\partial p^{m,c}}{\partial z} + \text{Pr}^{-1} f_z^{m,c} \quad (\text{A.1e}) \\ \left(\Delta - \text{Pr}^{-1} \frac{\partial}{\partial t} \right) w^{m,s} = \text{Pr}^{-1} \frac{\partial p^{m,s}}{\partial z} + \text{Pr}^{-1} f_z^{m,s} \quad (\text{A.1f}) \\ \left(\Delta - \frac{\partial}{\partial t} \right) \Theta^{m,c} = f_\Theta^{m,c} \quad (\text{A.1g}) \\ \left(\Delta - \frac{\partial}{\partial t} \right) \Theta^{m,s} = f_\Theta^{m,s} \quad (\text{A.1h}) \end{array} \right.$$

où le laplacien s'exprime maintenant en fonction de m

$$\Delta X = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial X}{\partial r} \right) - \frac{m^2}{r^2} X + \frac{\partial^2 X}{\partial z^2} \quad (\text{A.2})$$

Les conditions aux limites aux parois solides sont des conditions d'adhérence pour la vitesse et de flux nul pour la température et s'écrivent :

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathbf{u}^{m,c} = \mathbf{u}^{m,s} = \mathbf{0} \quad (\text{A.3a}) \\ \frac{\partial \Theta^{m,c}}{\partial \mathbf{n}} = \frac{\partial \Theta^{m,s}}{\partial \mathbf{n}} = 0 \quad (\text{A.3b}) \end{array} \right.$$

En surface libre, les conditions aux limites seront pour chaque composante explicitées par la suite. Le couplage entre u et v fixe l'ordre de résolution des équations. En effet si l'on veut se ramener à la résolution d'un problème de Helmholtz pour chaque variable, il faut résoudre en premier la température. Le champ de vitesse et température étant couplés par la poussée d'Archimède on obtient ensuite la vitesse axiale. On utilise ensuite la relation d'incompressibilité pour pouvoir exprimer v et fonction de u . Pour la température, en mettant les équations A.1g et A.1h sous forme matricielle, il vient :

$$\mathcal{OP}_1 \begin{pmatrix} \Theta^{m,c} \\ \Theta^{m,s} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} f_\Theta^{m,c} \\ f_\Theta^{m,s} \end{pmatrix} \quad (\text{A.4})$$

avec

$$\mathcal{OP}_1 = \left(\Delta - \frac{\partial}{\partial t} \right) \quad (\text{A.5})$$

La condition à la limite en surface libre ($z = 1$) s'écrit :

$$\begin{cases} \frac{\partial \Theta^{m,c}}{\partial z} + \text{Bi} \Theta^{m,c} = \begin{cases} -\text{Bi} & \text{si } m = 0 \\ 0 & \text{si } m \neq 0 \end{cases} \\ \frac{\partial \Theta^{m,s}}{\partial z} + \text{Bi} \Theta^{m,s} = \begin{cases} -\text{Bi} & \text{si } m = 0 \\ 0 & \text{si } m \neq 0 \end{cases} \end{cases} \quad (\text{A.6a})$$

$$\quad (\text{A.6b})$$

Il suffit d'inverser l'opérateur \mathcal{OP}_1 en introduisant les conditions aux limites A.6 pour obtenir Θ . On calcule ensuite le terme de pression p avec le schéma classique de projection-diffusion. Le détail de la résolution de la pression avec la discrétisation temporelle peut être consulté en Annexe A.1. Une fois le terme de pression obtenu on calcule la vitesse axiale. L'opérateur qui intervient est similaire à celui sur la température. Des équations A.1e et A.1f on a :

$$\mathcal{OP}_2 \begin{pmatrix} w^{m,c} \\ w^{m,s} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} f_z^{m,s} \\ f_z^{m,s} \end{pmatrix} \quad (\text{A.7})$$

Ici, le terme de forçage contient la poussée d'Archimède, le terme non linéaire ainsi que les variables connues des étapes précédentes. La condition à la limite sur w en surface libre s'écrit :

$$\begin{cases} w^{m,c} = 0 \\ w^{m,s} = 0 \end{cases} \quad (\text{A.8a})$$

$$\quad (\text{A.8b})$$

L'inversion de \mathcal{OP}_2 avec les condition aux limites appropriées A.3a et A.8 nous donne w . On calcule ensuite la vitesse radiale u en utilisant l'équation de la divergence pour exprimer v en fonction de u et w et le remplacer dans les équations portant sur u :

$$\begin{cases} \frac{m}{r} v^{m,s} = - \left(\frac{\partial u^{m,c}}{\partial r} + \frac{u^{m,c}}{r} + \frac{\partial w^{m,c}}{\partial z} \right) \\ \frac{m}{r} v^{m,c} = \frac{\partial u^{m,s}}{\partial r} + \frac{u^{m,s}}{r} + \frac{\partial w^{m,s}}{\partial z} \end{cases} \quad (\text{A.9a})$$

$$\quad (\text{A.9b})$$

En injectant ces relations dans les équations A.1a et A.1b on obtient :

$$\mathcal{OP}_3 \begin{pmatrix} u^{m,c} \\ u^{m,s} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} f_r^{m,c} \\ f_r^{m,s} \end{pmatrix} \quad (\text{A.10})$$

A cette étape le second membre contient le terme non linéaire ainsi que toutes les variables connues, à savoir w et p . L'opérateur \mathcal{OP}_3 s'écrit :

$$\mathcal{OP}_3 = \left(\Delta_u - \text{Pr}^{-1} \frac{\partial}{\partial t} \right) \quad (\text{A.11})$$

avec

$$\Delta_u = \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{3}{r} \frac{\partial}{\partial r} - \frac{m^2 - 1}{r^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \quad (\text{A.12})$$

La condition à la limite pour la variable u en surface libre :

$$\begin{cases} \frac{\partial u^{m,c}}{\partial z} = -\text{Ma} \frac{\partial \Theta^{m,c}}{\partial r} \\ \frac{\partial u^{m,s}}{\partial z} = -\text{Ma} \frac{\partial \Theta^{m,s}}{\partial r} \end{cases} \quad (\text{A.13a})$$

$$\quad (\text{A.13b})$$

Il reste le calcul de v , toutes les autres variables sont connues et rassemblées dans le second membre. Les équations A.1c et A.1d s'écrivent :

$$\mathcal{OP}_4 \begin{pmatrix} v^{m,c} \\ v^{m,s} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} f_\phi^{m,c} \\ f_\phi^{m,s} \end{pmatrix} \quad (\text{A.14})$$

avec

$$\mathcal{OP}_4 = \left(\Delta_v - \text{Pr}^{-1} \frac{\partial}{\partial t} \right) \quad (\text{A.15})$$

et

$$\Delta_v = \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} - \frac{m^2 + 1}{r^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \quad (\text{A.16})$$

La condition à la limite pour la variable v en surface libre :

$$\begin{cases} \frac{\partial v^{m,c}}{\partial z} = \text{Ma} \frac{m}{r} \Theta^{m,s} \\ \frac{\partial v^{m,s}}{\partial z} = -\text{Ma} \frac{m}{r} \Theta^{m,c} \end{cases} \quad (\text{A.17a})$$

$$\begin{cases} \frac{\partial v^{m,c}}{\partial z} = \text{Ma} \frac{m}{r} \Theta^{m,s} \\ \frac{\partial v^{m,s}}{\partial z} = -\text{Ma} \frac{m}{r} \Theta^{m,c} \end{cases} \quad (\text{A.17b})$$

Annexe B

Articles

Cette annexe ressenne les articles parus dans des revues internationales soumises à comité de lecture. Elle contient :

- Un article paru dans *Journal of Computational Physics* 229 (2010) 7277–7286
- Un article à paraître dans *European Physical Journal - Special Topics*

About the ellipticity of the Chebyshev-Gauss-Radau discrete Laplacian with Neumann condition

B. Trouette^{a,*}, C. Delcarte^a, G. Labrosse^a

^a*Univ. Paris Sud 11, Limsi-CNRS, F-91405 Orsay, France*

Abstract

The Chebyshev Gauss-Radau discrete version of the polar-diffusion operator, $\left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r}\right) - \frac{k^2}{r^2}\right)$, k being the azimuthal wave number, presents complex conjugate eigenvalues, with negative real parts, when it is associated with a Neumann boundary condition imposed at $r = 1$. It is shown that this ellipticity marginal violation of the original continuous problem is genuine and not due to some round-off error amplification. This situation, which does not lead per se to any particular computational difficulty, is taken here as an opportunity to numerically check the sensitivity of the quoted ellipticity to slight changes in the mesh. A particular mapping is chosen for that purpose. The impact of this option on the ellipticity and on the numerical accuracy of a computed flow is evaluated.

Keywords: polar Laplacian, spectral collocation method, ellipticity, mapping

1. Introduction

Chebyshev or Legendre pseudo-spectral methods ([1]) are of common use for solving the coupled balance equations of momentum, heat and/or mass transfer. Temporal discretization of these equations often leads to elliptic Helmholtz problems. When these multidimensional elliptic problems are separable their numerical solution can be efficiently obtained using the Successive Diagonalization Technique (SDT), ([2, 3]). This approach amounts to work in the Helmholtz operator numerical eigenspace, itself being tensorially constructed from the eigenspaces of the 1D second derivatives (see [2]). This leads to cheap (for DNS of turbulence, for instance, ([4])) and accurate numerical solutions of a large variety of diffusion problems. In particular, each transported quantity has its own set of boundary conditions, possibly different, moreover, in each space direction. A unique 1D coding structure allows us to treat all these boundary conditions. This includes the numerical and computational treatment of the pressure problem, a quasi-Poisson operator ([5, 6]), which does not require any boundary condition to be inverted, as expected since the pressure is known to be often

*Corresponding author

Email addresses: benoit.trouette@limsi.fr (B. Trouette),
claudine.dang-vu-delcarte@limsi.u-psud.fr (C. Delcarte), gerard.labrosse@u-psud.fr (G. Labrosse)

deprived from any boundary condition. In fact the SDT can be implemented in many multi-dimensional configurations where the differential problem is separable. It works also when there are one or more zero eigenvalues, as in the cases of diffusion problems with Neumann conditions over the whole boundary or of the quasi-Poisson operator for the pressure. It could also work with complex eigenvalues. By the way, the SDT has been extended in [7] to the case where the boundary conditions involve mixed tangential and normal derivatives.

With regard to that, a Galerkin approach ([8]) for solving these coupled multidimensional elliptic systems does not appear to be as convenient. And there is no way to design a Galerkin formulation to the quasi-Poisson problem. Furthermore the SDT works as well in the physical space so that no back and forth transformation is needed between the physical and spectral spaces.

What makes this SDT so easy to implement and so efficient is however the ellipticity of the original continuous problem, provided this ellipticity be preserved at the discrete level. This is obtained in most of the cases, for instance in the Cartesian configuration, viz. with $\frac{\partial^2}{\partial z^2}$ completed with any boundary condition imposed at $z = \pm 1$. In cylindrical coordinates, the easy implementation of the SDT therefore depends upon the ellipticity of the companion operator of $\frac{\partial^2}{\partial z^2}$, namely the polar operator $\left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r}\right) - \frac{k^2}{r^2}\right)$, k being the azimuthal wave number. Polar ellipticity is preserved in its Chebyshev Gauss-Radau discrete version when a Dirichlet boundary condition is imposed at $r = 1$, say. When Neumann condition is imposed at $r = 1$, a few couples of complex conjugate eigenvalues, with negative real parts, show up for given values of k when the radial cut-off frequency N verifies $N > 13$. This paper shows that the presence of these complex eigenvalues, which marginally violates the ellipticity of the original polar problem, is genuine and not due to some round-off error amplification associated itself with the bad conditioning of the Gauss-Radau matrix.

As said before, the SDT could still be used, remaining efficient, at the expense of an adequate coding of the complex algebra which comes partially into play. Nevertheless it is conceptually interesting to take advantage of this configuration for checking the sensitivity of the ellipticity upon slight changes in the mesh. To this end we have chosen a method, not designed for this purpose, which can continuously stretch the Gauss-Radau grid until making a regular grid. Does a slight change from a Gauss-Radau grid lead back to the ellipticity of the operator? It is observed that this does help for circumventing the occurrence of complex eigenvalues. An evaluation is made of the impact this approach has on the accuracy of the solution.

2. Continuous problems

2.1. The inhomogeneous problem

Let us consider the diffusion equation in polar coordinates $(\mathbf{e}_r, \mathbf{e}_\phi)$,

$$\left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r}\right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2}\right) u = f(r, \phi) \quad \text{with } r \in (0, 1) \quad \text{and } \phi \in [0, 2\pi), \quad (1)$$

where $u(r, \phi)$ and $f(r, \phi)$ are real fields. To be quite general a Robin boundary condition is imposed at $r = 1$, viz.

$$a u(r = 1, \phi) + b \frac{\partial u}{\partial r}(r = 1, \phi) = c(\phi) \quad \text{with } \phi \in [0, 2\pi), \quad (2)$$

where the real coefficients a and b are assumed to satisfy the ellipticity sufficient condition, $\frac{a}{b} > 0$. Dirichlet or Neumann conditions respectively correspond to fixing ($b = 0, a = 1$) or ($a = 0, b = 1$) in (2). All the fields are necessarily periodic in the azimuthal direction. They can therefore be expanded in Fourier series, with

$$\begin{pmatrix} u(r, \phi) \\ f(r, \phi) \\ c(\phi) \end{pmatrix} = \sum_{|k|=0}^{\infty} \begin{pmatrix} \hat{u}_k(r) \\ \hat{f}_k(r) \\ \hat{c}_k \end{pmatrix} e^{ik\phi}, \quad \text{integer } k. \quad (3)$$

Since the left-hand-side fields are real their $k \neq 0$ Fourier components are complex conjugate, $\hat{\bullet}_k(r) = \hat{\bullet}_{-k}^*(r)$, $\bullet = u, f, c$, for $k \neq 0$. Thus, the unknown fields of the expansion (3) are those which correspond to $k \geq 0$ for example. Plugging (3) into (1) and (2) leads to the following set of mono-dimensional problems,

$$\left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right) - \frac{k^2}{r^2} \right) \hat{u}_k = \hat{f}_k(r) \quad \text{with } r \in (0, 1) \quad \text{and for } k = 0, \dots, \infty, \quad (4)$$

each completed with a boundary condition, viz.

$$a \hat{u}_k(r = 1) + b \frac{d\hat{u}_k}{dr}(r = 1) = \hat{c}_k \quad \text{for } k = 0, \dots, \infty. \quad (5)$$

2.2. The associated homogeneous problems

The associated homogeneous problems read

$$\left(\frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left(r \frac{d}{dr} \right) - \frac{k^2}{r^2} \right) u_k = -\lambda^2 u_k \quad ; \quad r \in (0, 1), \quad k = 0, \dots, \infty, \quad (6)$$

completed with the homogeneous boundary conditions

$$a u_k(r = 1) + b \frac{du_k}{dr}(r = 1) = 0 \quad \text{for } k = 0, \dots, \infty. \quad (7)$$

The analytical solutions of (6)-(7) express in terms of the Bessel functions of the first kind,

$$u_k(r) = J_k(\lambda r),$$

where λ is anyone of the roots, in infinite number, of the following equations,

$$\text{for } k = 0 : a J_0(\lambda) = b \lambda J_1(\lambda),$$

$$\text{for } k \geq 1 : a J_k(\lambda) + \frac{b}{2} \lambda (J_{k-1}(\lambda) - J_{k+1}(\lambda)) = 0.$$

All the λ 's are real.

3. Discretized problems

3.1. The inhomogeneous problems

Let N be the radial cut-off frequency and r_p , with $p = 0, \dots, N$, be the radial location of the Chebyshev Gauss-Radau collocation points, where

$$r_p = \frac{1}{2} \left(1 - \cos \left(\frac{(2p+1)\pi}{2N+1} \right) \right), \quad p = 0, \dots, N. \quad (8)$$

Choosing the Gauss-Radau nodes allows us to avoid the $r = 0$ singular position which occurs in the operator (4), the closest node to $r = 0$ being at $r_0 = \frac{1}{2} \left(1 - \cos \left(\frac{\pi}{2N+1} \right) \right) \simeq \left(\frac{\pi}{2(2N+1)} \right)^2$. The discrete version of (4) and (5) is obtained by introducing the polynomial approximation of the $\hat{u}_k(r)$'s,

$$\hat{u}_k^{(N)}(r) = \sum_{p=0}^N (\hat{u}_k)_p l_p^{(N)}(r) \quad \text{with} \quad (\hat{u}_k)_p \equiv \hat{u}_k^{(N)}(r_p),$$

the $l_p^{(N)}(r)$'s being the Lagrange polynomials based over the Chebyshev Gauss-Radau nodes (8). Let \mathbf{D} and $\mathbf{D}^{(2)}$ be the respective Gauss-Radau matrix representations of $\frac{d}{dr}$ and $\left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right) \right)$, the superscript (2) indicating that $\mathbf{D}^{(2)}$ is not the square of \mathbf{D} . The discretized version of (4) and (5) reads

$$\sum_{q=0}^N \mathbf{D}_{pq}^{(2)} (\hat{u}_k)_q - \frac{k^2}{r_p^2} (\hat{u}_k)_p = \left(\hat{f}_k \right)_p, \quad p = 0, \dots, N-1, \quad \text{for} \quad k = 0, \dots, \infty, \quad (9)$$

where $\left(\hat{f}_k \right)_p \equiv \hat{f}_k(r_p)$, and

$$a (\hat{u}_k)_N + b \sum_{q=0}^N \mathbf{D}_{Nq} (\hat{u}_k)_q = \hat{c}_k \quad \text{for} \quad k = 0, \dots, \infty. \quad (10)$$

The matrix system (9) is rectangular. It is made square upon eliminating the $(\hat{u}_k)_N$'s through (10), with

$$(\hat{u}_k)_N = \frac{\hat{c}_k - b \sum_{q=0}^{N-1} \mathbf{D}_{Nq} (\hat{u}_k)_q}{a + b \mathbf{D}_{NN}} \quad \text{for} \quad k = 0, \dots, \infty.$$

The resulting discrete system reads

$$\sum_{q=0}^{N-1} \left(D_{pq}^{(2)} \right) (\hat{u}_k)_q - \frac{k^2}{r_p^2} (\hat{u}_k)_p = \left(\hat{f}_k \right)_p - \frac{\hat{c}_k \mathbf{D}_{pN}^{(2)}}{a + b \mathbf{D}_{NN}}, \quad p = 0, \dots, N-1, \quad (11)$$

where

$$\left(D_{pq}^{(2)} \right) = \mathbf{D}_{pq}^{(2)} - \frac{b \mathbf{D}_{pN}^{(2)} \mathbf{D}_{Nq}}{a + b \mathbf{D}_{NN}}. \quad (12)$$

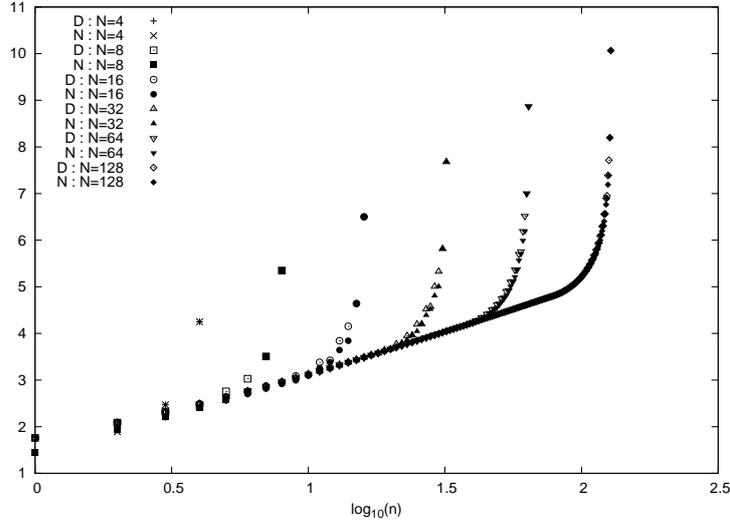


Figure 1: $\log_{10} (|\xi_n|)$ as a function of $\log_{10} (n)$, $n = 1, \dots, N$, for the Dirichlet and Neumann cases, obtained with various N 's and $k = 4$.

3.2. The homogeneous problems

Implementing the SDT is then based on the eigenmodes of the matrices $\left(D_{\underline{R}}^{(2)} - \frac{k^2}{r^2}\right)$ which come from the l.h.s. of (11), wherein $\frac{k^2}{r^2}$ stands for the diagonal matrix of entries $\frac{k^2}{r_p^2}$, with $p = 0, \dots, N - 1$. Let us therefore introduce the discrete eigenvalue problem,

$$\sum_{q=0}^{N-1} \left(D_{\underline{R}}^{(2)}\right)_{pq} \left(\hat{U}_k\right)_q - \frac{k^2}{r_p^2} \left(\hat{U}_k\right)_p = \xi \left(\hat{U}_k\right)_p, \quad p = 0, \dots, N - 1 \quad \text{for } k = 0, \dots, \infty.$$

It leads for each k to N numerical eigenvalues, ξ_n , for $n = 1, \dots, N$, ordered with increasing absolute value of their real parts.

3.3. The numerical eigenvalues of the polar-diffusion problem

3.3.1. In the Neumann case

For the Cartesian operator, $\frac{d^2}{dx^2} + b.c.$, the numerical eigenvalues can be expressed analytically, ([9]), whereas, so far, those of $\left(D_{\underline{R}}^{(2)} - \frac{k^2}{r^2}\right)$ can only be obtained by numerical experiments. These latter were performed, for the sake of this analysis, for $N \leq 200$ and $k \leq 500$. In the Dirichlet case, viz. fixing $a = 1$ and $b = 0$ in (7) and (12), the ξ_n 's were found as being all real and negative, $\xi_n = -\lambda_n^2$ with real λ_n 's. The situation is fairly different in the Neumann case, $a = 0$ and $b = 1$ in (7) and (12).

Figure 1 displays the Dirichlet and Neumann numerical spectra obtained with various values of N , all with $k = 4$. The N eigenvalues are all real and negative. As well known a significant part of them converges towards the analytical spectrum given by the envelope (the analytical zone, say), which is common to all these plots. The remaining part of the

numerical spectrum (the numerical zone, say) has a well known specific behavior. But taking now $N = 128$ and $k = 11$ for computing the Neumann spectrum leads to $(N - 2)$ real negative eigenvalues, plus a pair of conjugate complex eigenvalues with real negative parts, while the N Dirichlet ξ_n 's remain all real and negative. This is shown in Fig. 2 where $\log_{10} (|Re(\xi_n)|)$ and $\log_{10} (|Im(\xi_n)|)$ are plotted as functions of $\log_{10} (n)$. The pair of complex conjugate eigenvalues occur at the end of the analytical zone, with a real part falling at the right location. Both (equal) imaginary parts are small, but definitely not compatible with the machine zero. The lowest $k(N)$ value which leads to complex eigenvalues of $\left(D_R^{(2)} - \frac{k^2}{r^2}\right)$ has been looked for. The result is given in Fig. 3 : there is at least one particular value of k , $k \leq 500$, for most of the values taken by N , for $N \geq 13$, where complex eigenvalues occur in the Neumann spectrum.

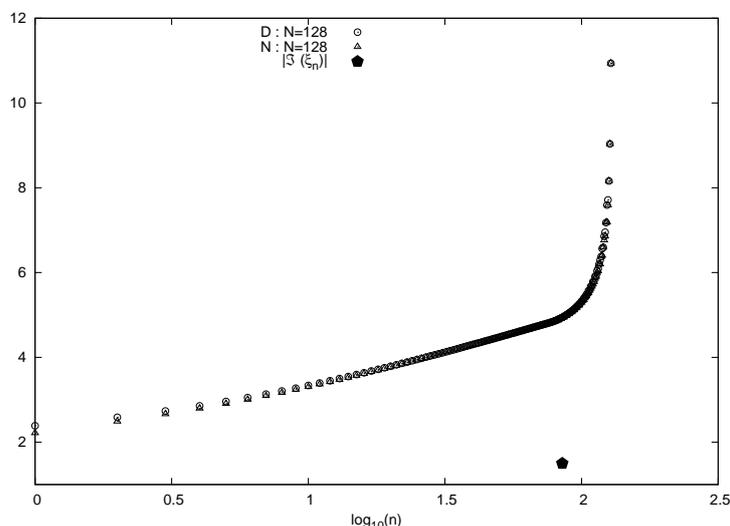


Figure 2: $\log_{10} (|Re(\xi_n)|)$ and $\log_{10} (|Im(\xi_n)|)$ as functions of $\log_{10} (n)$, $n = 1, \dots, N$, for the Dirichlet and Neumann cases, obtained with $N = 128$ and $k = 11$.

3.3.2. In the Robin case

When the Robin conditions (5) are adopted, and discretized using a Gauss-Radau grid with $N + 1$ nodes, the order of magnitude of the Neumann contribution is $|b|N^2$. It is therefore expected that complex eigenvalues will occur in the polar-diffusion problem if $|b|N^2 \gg |a|$.

3.4. Origin of the numerical complex eigenvalues

Should these complex eigenvalues be considered as spurious, and/or simply due to the bad conditioning of the matrix $\left(D_R^{(2)} - \frac{k^2}{r^2}\right)$? The answer is supplied by two numerical tests, both performed with $k = 39$. As indicated by Fig. 3, complex eigenvalues occur with $N = 18, 19, 20, 21$ for example. First, computing them for $N = 20$ while increasing the

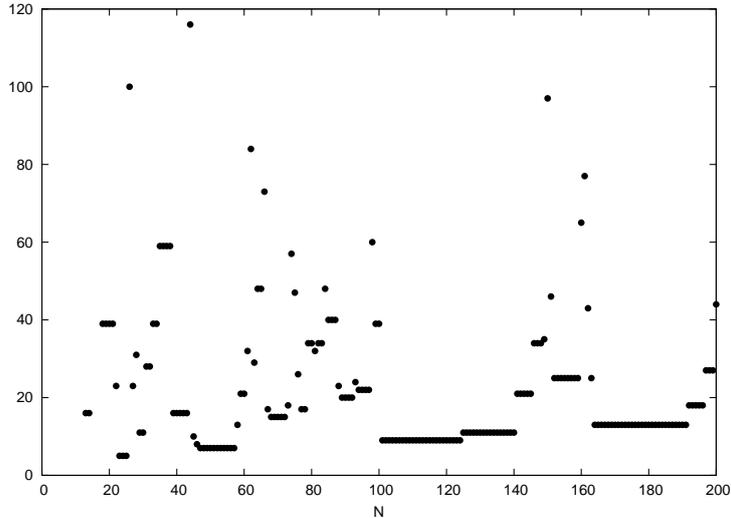


Figure 3: The lowest $k(N)$ values which lead to complex eigenvalues of $\left(D_R^{(2)} - \frac{k^2}{r^2}\right)$.

number of significant digits, as it is made possible by the Mathematica software, shows that the complex eigenvalues are not sensitive to round-off errors. They definitely converge to more and more accurately determined values, $-11879.8 \pm 17.3509 i$, or so. Second, computing the eigenvalues for $N = 22$, now, leads to a purely real spectrum, despite the fact that the matrix conditioning should be worst than with $N = 20$. It can thus be concluded that the complex eigenvalues are genuine eigenvalues of the discrete problem.

4. Is the ellipticity sensitive to slight changes of the grid ?

4.1. Introduction

The Gauss grids (including the Gauss-Radau and Gauss-Lobatto cases) are known to be required for satisfying two intimately related criteria. First, they give access to the most accurate polynomial interpolation, in a bounded region, of any continuous function. Second, they preserve in the discrete space the orthogonality relations between the polynomials of the basis defined in the continuous realm. Should these grids preserve the ellipticity of the continuous operator ? The answer is positive in most of the cases. However, it has been observed that the Projection-Diffusion uncoupling of the velocity and pressure, the consistent Stokes solver analysed in [6], presents a few couples of complex conjugate eigenvalues when Dirichlet boundary conditions are imposed on the velocity. This marginal violation of the Stokes ellipticity looks like the one this paper is devoted to since, in both cases, the discrete operator mixes parts of second and first derivative matrices, the first derivative coming from ∇p in the Stokes solver and from the Neumann condition in the present problem.

Let us see therefore if the ellipticity can be recovered by making slight changes in the Gauss-Radau grid.

4.2. The mapping

To this end, we will use a mapping proposed in [10] by D. Kosloff and H. Tal-Ezer. Their goal is increase, from an $\mathcal{O}(N^{-2})$ to an $\mathcal{O}(N^{-1})$ limitation, the CFL critical time step value that occurs when solving the 1D hyperbolic equation, on a Gauss-Lobatto grid. This mapping will thus move our Gauss-Radau nodes of abscissae r_i to new locations of abscissae x_i , according to the α -mapping relation

$$x_i = g(r_i; \alpha) = \frac{\arcsin(\alpha r_i)}{\arcsin(\alpha)} \in (-1, 1] \quad \text{for } i = 0, \dots, N \quad \text{with } 0 \leq \alpha < 1.$$

For α going until 0.9, or so, the mapping just slightly moves the Gauss-Radau nodes, keeping the $\mathcal{O}(N^{-2})$ refinement at both extremities of the radial axis, while values of α very close to 1 lead to almost evenly distributed nodes over $(-1, 1]$.

This mapping has been widely studied (see the review by Boyd [11] p. 335, and more recent contributions, for example [12]). All these analyses are focussed onto finding the value of the mapping parameter α which both increases the critical time step of a CFL stability criterion and preserves the spectral accuracy of the results. We now use this mapping for an elliptic problem, and with a different goal. We just hope to, at least, delay in N and k the occurrence of complex eigenvalues while not losing a significant level of accuracy. According to some of the quoted analyses (Hesthaven et al [13] and Boyd [11]), and taking into account the fact that we use a not too large range of N values (somewhere in between 30 and 160), we choose $\alpha = 0.9$. This value is not too far from the value $\alpha = \cos(1/2) \simeq 0.87$ suggested by [11]. As a matter of comparison, an 0.99-mapping is also considered.

We will see if ellipticity is recovered and evaluate the impact this option has on the numerical accuracy of a flow simulation.

4.3. Mapping of the derivation operators

Any function $f(r)$ is transformed into $h(x)$ whose first derivative is obtained from

$$\frac{dh}{dx} = \frac{1}{g'(r; \alpha)} \frac{df}{dr} \quad \text{with} \quad g'(r; \alpha) = \frac{\partial g}{\partial r}.$$

The radial discrete first derivative \mathbf{D} is transformed as

$$\mathbf{D} \rightarrow \mathbf{A} \cdot \mathbf{D}$$

where \mathbf{A} is a diagonal matrix whose entries are given by

$$\mathbf{A}_{ii} = \frac{1}{g'(r_i, \alpha)} \quad , \quad i = 0, \dots, N,$$

where

$$g'(r_i; \alpha) = \frac{\alpha}{\arcsin(\alpha) \sqrt{1 - (\alpha r_i)^2}}$$

In the same way, the matrix \mathbf{D}^2 which represents $\frac{d^2}{dr^2}$ is modified according to

$$\mathbf{D}^2 \rightarrow \mathbf{A}^2 \cdot \mathbf{D}^2 + \mathbf{B} \cdot \mathbf{D},$$

the diagonal matrix \mathbf{B} being defined by

$$\mathbf{B}_{ii} = -\frac{g''(r_i; \alpha)}{[g'(r_i; \alpha)]^3}, \quad i = 0, \dots, N,$$

where

$$g''(r_i; \alpha) = \frac{\alpha^3}{\arcsin(\alpha)} \cdot \frac{r_i}{[1 - (\alpha r_i)^2]^{3/2}}.$$

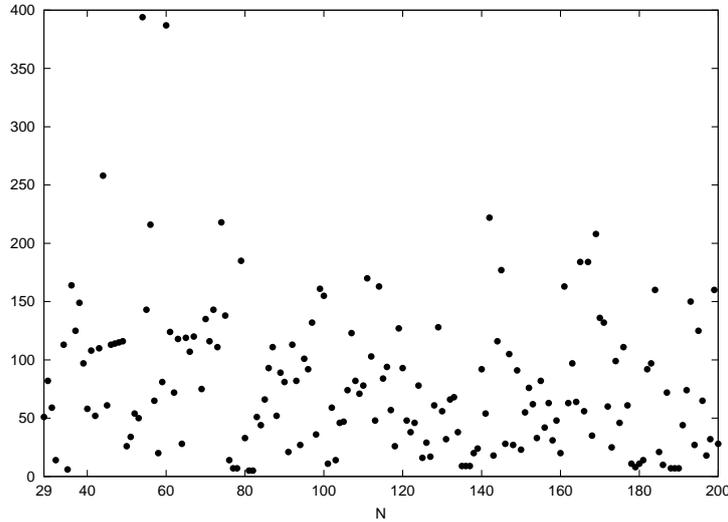


Figure 4: The lowest $k(N)$ values leading to complex eigenvalues of $\left(D_{\underline{R}}^{(2)} - \frac{k^2}{r^2}\right)$, with $\alpha = 0.9$.

4.4. Impact on the ellipticity of the polar-diffusion operator

Figures 4 and 5 show the way the $k(N)$ configuration which leads to complex eigenvalues has been modified with these 0.9- and 0.99-mappings, comparing them with Fig. 3. Complex eigenvalues are still occurring, but for higher values of N , viz. $N \geq 29$ and $N \geq 81$ respectively, and also for much larger values of k .

4.5. Mapping and accuracy: comparison on a physical configuration

It is instructive to evaluate the accuracy impact of the mapping in a practical case. We now consider the axi-symmetric floating-zone problem in microgravity environment which is described in detail in [14] and [15]. A cylindrical liquid bridge, of height $2H$ and radius R , is maintained by surface tension between two horizontal isothermal solid disks. Its lateral free surface is submitted to a steady and uniform heat flux. This triggers and maintains a

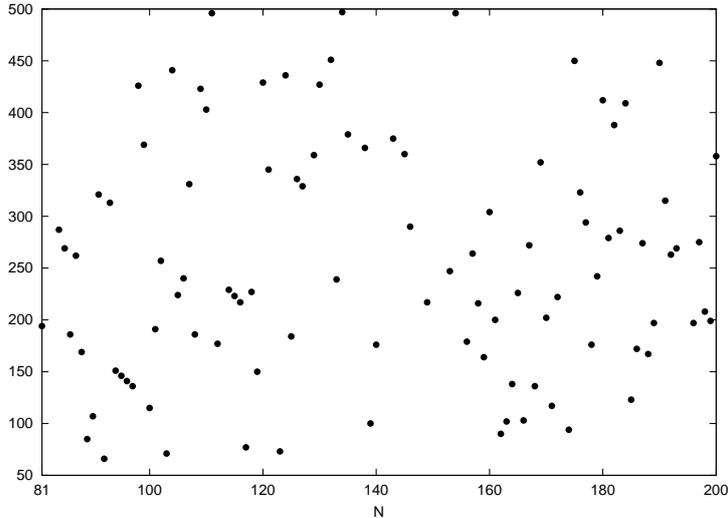


Figure 5: The lowest $k(N)$ values leading to complex eigenvalues of $\left(D_{\underline{R}}^{(2)} - \frac{k^2}{r^2}\right)$, with $\alpha = 0.99$.

thermo-capillary flow : the surface tension variations, due to the thermal gradients on the free surface, generate tangential stresses and then viscous driving of the liquid. The flow is generally studied in a two-parameter space : the Prandtl number (Pr), ratio between momentum and thermal diffusivities, and the Marangoni number (Ma), ratio between thermocapillary and thermal diffusion velocities. The axi-symmetric velocity and temperature fields of the flow were deeply studied on a large domain of the parameters space in [14] and [15]. The impact of the numerical treatment of the vorticity singularity which occurs at the junction of the free surface with the rigid disks was explored in [16] and [17]. The governing equations are given in Appendix.

Let w_{ij} be the set of the axial-velocity nodal values obtained on the Gauss-Radau grid, and w_{ij}^{map} the corresponding set obtained from the 0.9-mapping applied on this grid.

Figure 6 presents two sets of different data. The iso- w lines are plotted in both left pannels, with 70 and 100 as cut-off values in the radial and axial directions. The upper right pannel shows the relative difference

$$E_{ij} = \frac{|w_{ij}^{map} - w_{ij}|}{\max_{i,j} |w_{ij}^{map}|}, \quad (13)$$

computed over the mapped grid. The associated scale in this figure indicates that this relative error stays around the value 10^{-7} . Taking now $\alpha = 0.99$, the relative error E is then amplified by three decades. The relative difference between the 0.9-mapped and unmapped results is thus not too important. The grid transformation can therefore be used to stay in an elliptic context.

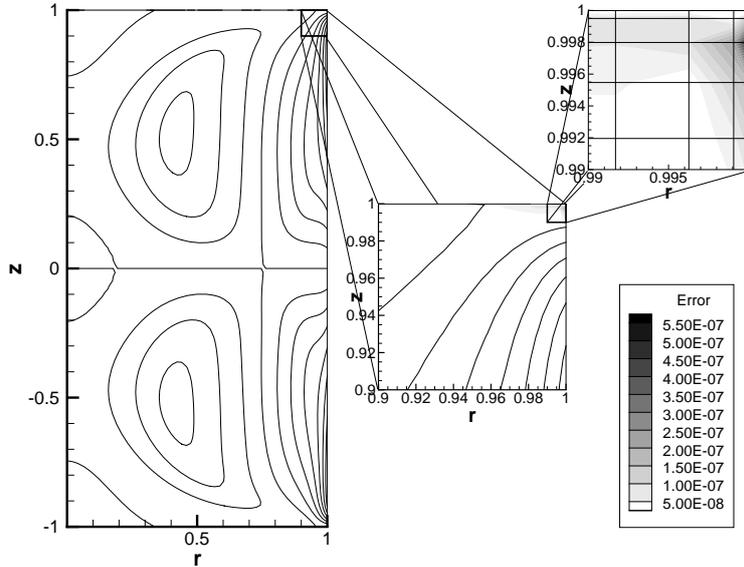


Figure 6: Iso- w lines in the two leftmost panels, and, in the right panels, the relative difference $E_{ij} = \frac{|w_{ij}^{map} - w_{ij}|}{\max_{i,j} |w_{ij}^{map}|}$, with its scale, for $\alpha = 0.9$ ($Ma = 106$ and $Pr = 0.01$).

4.6. Impact of the mapping on the polar-diffusion spectrum

The maximum discrepancy is observed in Fig. 6 to be located in regions of steep vorticity gradient, which corresponds to high spatial frequencies of the solution. This section shows the reason of this behavior.

Thanks to the mapping, spectra which were previously polluted by complex eigenvalues are now purely real. But does this mapping affect, and to which extent, the spectrum itself of the polar-diffusion operator? Let $\xi^{(\alpha)}$ be the set of the numerical eigenvalues of this operator obtained from an α -mapping. We compare it with the ξ 's obtained without mapping. One of the Neumann cases presented in Fig. 1 is chosen. It corresponds to $N = 128$, $k = 4$. In Fig. 7 are plotted the relative differences $\left| \frac{\xi_n^{(\alpha)} - \xi_n}{\xi_n} \right|$ obtained for several values of α . Two regions clearly show up. The first region is the part of the spectra where the numerical eigenvalues are in good agreement with the analytical ones, the common envelope in Fig. 1. The mapping significantly affects the accuracy of these numerical eigenvalues, but at a level which is without any practical importance. The second region lies in the purely numerical part of Fig. 1, wherein the eigenvalues strongly depart from the analytical ones. This is the region of Fig. 7 which exhibits a very steep increase of the relative differences. The practical consequences of this behavior in Fig. 7 are precisely exhibited in the upper right panel of Fig. 6.

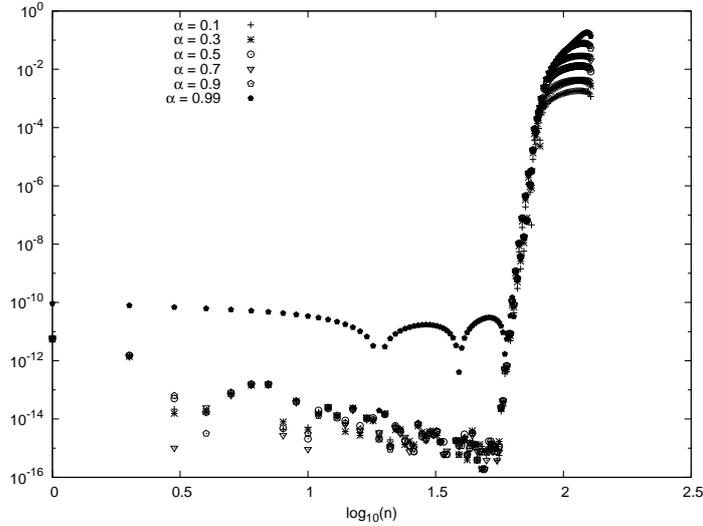


Figure 7: Relative differences $\left| \frac{\xi_n^{(\alpha)} - \xi_n}{\xi_n} \right|$, for the Neumann cases, obtained with various N 's and $k = 4$ with several values of α .

5. Conclusion

The Chebyshev Gauss-Radau discrete version of the polar-diffusion operator, associated with a Neumann boundary condition at $r = 1$, does not preserve the expected ellipticity. Numerical complex conjugate eigenvalues, with negative real parts, are indeed obtained for a set of values of both the azimuthal wave-number k and the Gauss-Radau cut-off frequency N . We have shown that these complex eigenvalues are genuine eigenvalues of the discrete version of this operator. Adopting a slight transformation of the Gauss-Radau grid which preserves the $\mathcal{O}(N^{-2})$ refinement at both extremities of the radial axis, delays in N and k the occurrence of these complex eigenvalues. This clearly indicates that the discrete ellipticity is very sensitive to the location of the nodes in the grid. The effective departure between a numerical flow obtained in this way and the corresponding Gauss-Radau solution has been observed as globally small. The only zone in the flow where significant discrepancies appear is where a strong gradient occurs. This is related to the impact the mapping has on the polar operator numerical spectrum. It is indeed important for the high space-frequency eigenvectors.

Appendix

Governing equations for the thermocapillary problem

The axi-symmetric physical problem is governed by the following non-dimensional Navier-Stokes and energy equations, in the Boussinesq approximation framework,

$$\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = -\nabla p + Pr \left(\nabla^2 - \frac{\mathbf{e}_r}{r^2} \right) \mathbf{u}, \quad (14)$$

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \theta = \nabla^2 \theta, \quad (15)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad (16)$$

where \mathbf{u} , θ and p respectively are the non-dimensional velocity, temperature and pressure. The unit vectors \mathbf{e}_r and \mathbf{e}_z define respectively the radial and axial directions, their origin being located at the center of the liquid bridge (center of the cylinder). The operators are defined as follows: $\nabla = \mathbf{e}_r (\partial/\partial r) + \mathbf{e}_z (\partial/\partial z)$, $\nabla^2 = (1/r)(\partial/\partial r)[(r(\partial/\partial r))] + \partial^2/\partial z^2$. Noting $\mathbf{u} = v \mathbf{e}_r + w \mathbf{e}_z$, one has also $\nabla \cdot \mathbf{u} = (1/r)[\partial(rv)/\partial r] + (\partial w/\partial z)$ and $\mathbf{u} \cdot \nabla = v(\partial/\partial r) + w(\partial/\partial z)$.

To complete the set (14)-(16), boundary conditions are specified:

$$\begin{aligned} \bullet z = \pm 1 & \quad \begin{cases} \mathbf{u} = \mathbf{0} \text{ (no-slip conditions),} \\ \theta = 0 \text{ (imposed temperature),} \end{cases} \\ \bullet r = 1 & \quad \begin{cases} v = 0 \text{ (non-deformable free surface),} \\ \frac{\partial w}{\partial r} = -Ma \frac{\partial \theta}{\partial z} f(z) \text{ (stress condition),} \\ \frac{\partial \theta}{\partial r} = q(z) \text{ (heat flux).} \end{cases} \end{aligned} \quad (17)$$

with $q(z) = (1 - z^2)^2$ the heat flux. The parameter values are $Pr = 0.01$ and $Ma = 106$. The function $f(z) = (1 - z^{2n})^2$ is introduced for regularizing the vorticity singularity, n being here fixed to 13 according to the results of [16] and [17].

The system (14)-(17) is space-discretized with a Chebyshev collocation method based on radial Gauss-Radau and axial Gauss-Lobatto grids. Uncoupling the velocity and pressure fields is made with the Projection-Diffusion method, ([5, 6]). Time integration is performed with an usual second order finite difference scheme.

- [1] C. Canuto, M. Hussaini, A. Quarteroni, T. Zang, Spectral Methods in Fluid Dynamics, Springer Series in Computational Physics, Springer-Verlag, New York, 1988.
- [2] P. Haldenwang, G. Labrosse, S. Abboudi, M. Deville, Chebyshev 3D Spectral and 2D Pseudospectral Solvers for the Helmholtz Equation, J. Comput. Phys. 55 (1984) 115–128.
- [3] R. Lynch, J. Rich, D. Thomas, Direct Solution of Partial Differential Equations by Tensor Product Methods, Numer. Math. 6 (1964) 185–199.
- [4] E. Leriche, S. Gavrilakis, Direct Numerical Simulation of the Flow in a Lid-Driven Cubical Cavity, Phys. Fluids 12(6) (2000) 1363–1376.
- [5] A. Batoul, H. Khallouf, G. Labrosse, Une Méthode de Résolution Directe (Pseudo-Spectrale) du Problème de Stokes 2D/3D Instationnaire. Application à la Cavité Entraînée Carrée, C.R. Acad. Sci. Paris 319(I) (1994) 1455–1461.
- [6] E. Leriche, G. Labrosse, High-order direct Stokes solvers with or without temporal splitting : numerical investigations of their comparative properties, SIAM J. Scient. Comput. 22(4) (2000) 1386–1410.

- [7] S. Nguyen, C. Delcarte, A spectral collocation method to solve Helmholtz problems with boundary conditions involving mixed tangential and normal derivatives, *J. Comput. Phys.* 200 (2004) 34–49.
- [8] J. Shen, Efficient Spectral-Galerkin Method II. Direct Solvers of Second and Fourth Order Equations by Using Chebyshev Polynomials, *SIAM J. Sci. Comput.* 16(1) (1995) 74–87.
- [9] H. Vandeven, On the eigenvalues of second-order spectral differentiation operators, *Comput. Methods Appl. Mech. Engrg.* 80 (1990) 313–318.
- [10] D. Kosloff, H. Tal-Ezer, A modified Chebyshev pseudospectral method with an $O(N^{-1})$ time step restriction, *J. Comput. Phys.* 104 (1993) 457–469.
- [11] J. Boyd, Chebyshev and Fourier spectral methods, Dover Publishers, New York, 2001.
- [12] J. Mead, R. Renaut, Accuracy, resolution, and stability properties of a modified Chebyshev method, *Siam J. Sci. Comput.* 24 (2002) 143–160.
- [13] J. Hesthaven, P. Dinesen, J. Lynov, Spectral Collocation Time-Domain Modeling of Diffractive Optical Elements, *J. Comput. Phys.* 155 (1999) 287–306.
- [14] E. Chénier, C. Delcarte, G. Labrosse, Stability of the axisymmetric buoyant-capillary flows in a laterally heated liquid bridge, *Phys. Fluids* 11(3) (1999) 527–541.
- [15] E. Chénier, C. Delcarte, G. Kasperski, G. Labrosse, Sensitivity of the liquid bridge hydrodynamics to local capillary contributions, *Phys. Fluids* 14(9) (2002) 3109–3117.
- [16] G. Kasperski, G. Labrosse, On the numerical treatment of viscous singularity in wall-confined thermo-capillary convection, *Phys. Fluids* 12(11) (2000) 2695–2697.
- [17] E. Chénier, C. Delcarte, G. Kasperski, G. Labrosse, Thermocapillary flows and vorticity singularity, *Interfacial Fluid Dynamics and Transport Process, Lecture Notes in Physics*, vol. 628, R. Narayanan and D. Schwabe Eds., Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 2003.

Numerical study of convection induced by evaporation in cylindrical geometry

Benoît Trouette¹, Eric Chénier^{2,a}, Claudine Delcarte¹, and Béatrice Guerrier³

¹ Univ. Paris-Sud XI, LIMSI-CNRS, B.P. 133, 91403 Orsay Cedex, FRANCE

² Univ. Paris-Est, Lab. MSME, UMR 8208 CNRS, 77454 Marne-la-Vallée, FRANCE

³ UPMC Univ. Paris VI, Univ. Paris-Sud, CNRS, lab. FAST, Bât. 502, 91405 Orsay Cedex, FRANCE

Abstract. Numerical simulations of convection induced by solvent evaporation during the drying of a polymer solution are considered. This paper focuses on the transient thermal regime occurring at the beginning of the drying and transient solutal effects are not taken into account. The onset of convection (Bénard-Marangoni and Rayleigh-Bénard) is studied for a large range of initial thicknesses and viscosities. Several stochastic models are compared to analyze the influence of the perturbation description on the transition thresholds. Two-dimensional ($2D$) and three-dimensional ($3D$) models are shown to give close results. The $3D$ model is used to characterize the pattern evolution during the drying. In the case of surface tension driven convection, a method is developed to describe the cells morphology and their time evolution.

1 Introduction

The drying of binary fluid films including one volatile component appears in many industrial processes such as painting, inking or packaging. When drying a polymer/solvent solution, the vaporization of the solvent induces a temperature decrease at the free surface due to the latent heat transfer and the increase of the solute concentration. The resulting thermal and mass gradients create volume (buoyancy) and surface (capillary) forces that can generate a flow into the bulk [1–9]. One important point is that the flow is transient in most configurations. Indeed starting from a fluid at rest at ambient temperature, a transient diffusive regime takes place as soon as evaporation begins. Over time, the heat and mass transfers evolve and can generate convection. Sometime after, the fluid motion fades away due to thermal or solutal gradients changes and/or thickness reduction and viscosity increase. At the end, transfers are governed by diffusion again.

The numerical approach presented here follows an experimental study dealing with drying of polymer solutions. The development and evolution of convective patterns induced by solvent evaporation in a Polyisobutylene/toluene solution have been experimentally studied for a large range of initial thicknesses and viscosities [10]. In this paper we focus on the thermal transient regime that concerns the beginning of the drying only; solutal effects are disregarded. $2D$ numerical simulations [11] and linear stability analysis [12] have been performed for the transient thermal regime. Critical Marangoni and Rayleigh numbers have been determined as a function of the experimental control parameters. As pointed out in these previous works, it is more proper to view the results as the definition of a transition region rather than well defined threshold values between stable and unstable domains. Indeed, in transient problems, the thresholds depend on the criterion used to characterize *significant convection*, and also on

^a e-mail: eric.chenier@univ-paris-est.fr

the initial perturbation. It is then important to check that this transition region is thin and slightly depends on the perturbation characteristics (structure and amplitude). In the previous $2D$ numerical study [11], the initial condition consisted of a random vector field defined on collocation nodes. One of the purposes of this paper is to introduce more sophisticated models, closer to realistic physical behaviors, by using stochastic approaches and by taking into account spatial correlations for disturbances. The second point developed in this study is the extension of the $2D$ thermal model to the $3D$ configuration. Convection/diffusion threshold values are discussed and compared with $2D$ results. A particular attention is paid to flow structures at the beginning of the drying that cannot be described in $2D$ simulations.

2 Physical and mathematical model

The numerical simulations refer to experiments of polymer solutions drying [10]. Details on the approximations that have been considered for the thermal transient regime occurring at the beginning of the drying can be found in [11] and [12]. They are briefly recalled below.

A cylindrical container of radius R , with adiabatic solid surfaces, is filled with a Polyisobutylene/toluene solution over a thickness e (Fig. 1). Experimental visualizations by means

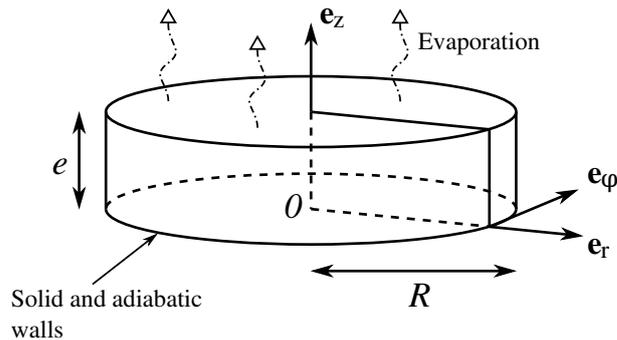


Fig. 1. Scheme of the configuration

of I.R. camera show some convective instabilities occurring on short periods of the order of some thermal diffusion times, this last time scale being 10^{-3} smaller than the solutal diffusion time scale. During this thermal regime, the solutal effects and decrease of the solution thickness are neglected. The mass fraction of the solvent is then assumed constant and the viscosity used in the simulations corresponds to the initial solute concentration. The two control parameters chosen in the experiments were the initial thickness ($0.3 \text{ mm} \leq e \leq 14.3 \text{ mm}$) and the initial viscosity through the initial polymer mass fraction ($0\% \leq \omega_p \leq 15\%$ corresponding to $5.5 \times 10^{-4} \text{ Pa.s} \leq \mu \leq 2.4 \text{ Pa.s}$). Given the physical properties of the solution and the geometric configuration, it can be shown that the instability mode due to the coupling between the Marangoni effect and the deflection of the free surface can be neglected [12]. Moreover, a non-zero base evaporation rate stabilizes the interface against deformation due to vapor dynamics [8]. The modelisation of the gas phase is here ignored and the free surface deformation is disregarded. The interface between the solution and surrounding gas is then considered as flat. The fluid is assumed Newtonian. Except for the viscosity, physical properties are those of the pure solvent. They are kept constant except for both the density in the buoyant term (Boussinesq approximation) and the surface tension in the capillary stress which depend linearly on the temperature. The thermal regime is thus governed by the Navier-Stokes and energy equations

in dimensionless form:

$$\begin{cases} \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = -\nabla p + \text{Pr} \Delta \mathbf{u} + \text{RaPr} \Theta \mathbf{1}_z \\ \frac{\partial \Theta}{\partial t} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \Theta = \Delta \Theta \\ \nabla \cdot \mathbf{u} = 0 \end{cases} \quad (1)$$

where $\mathbf{u} = (\mathbf{u} \cdot \boldsymbol{\tau}) \boldsymbol{\tau} + (\mathbf{u} \cdot \mathbf{1}_z) \mathbf{1}_z$, p and Θ respectively denote the dimensionless velocity, pressure and temperature fields; $\mathbf{1}_z$ stands for the upward unit vector normal to the free surface and $\boldsymbol{\tau}$ is unitary, such that $\boldsymbol{\tau} \cdot \mathbf{1}_z = 0$. The position vector \mathbf{x} writes in cylindrical coordinates $(\mathbf{1}_r, \mathbf{1}_\phi, \mathbf{1}_z)$, $\mathbf{x} = (r, \phi, z)$ and in $2D$ -Cartesian coordinates $(\mathbf{1}_x, \mathbf{1}_z)$, $\mathbf{x} = (x, z)$; the velocities are expressed by $\mathbf{u} = u \mathbf{1}_r + v \mathbf{1}_\phi + w \mathbf{1}_z$ and $\mathbf{u} = u \mathbf{1}_x + w \mathbf{1}_z$, respectively. The length, velocity, pressure and time are scaled by the fluid thickness e , the thermal diffusion velocity α/e , the dynamical pressure $\rho \alpha^2/e^2$ and the thermal diffusion time e^2/α , where α and ρ are the thermal diffusivity and the density of the solution. The reduced temperature is defined by $\Theta = (T - T_0)/\Delta T_s$ where ΔT_s is the difference between the initial temperature T_0 and the steady and uniform temperature at the end of the transient thermal regime. The temperature scale results from the balance, at the free surface, between the heat flux lost by evaporation, the convective heat transfer with the surrounding gas and the conduction in the liquid film. A one-sided model is used and heat transfer with the surroundings is taken into account by a constant and uniform convective coefficient h . Assuming small temperature variations, the evaporation flux can be linearized, given [11]:

$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial z} \Big|_{(z=e)} = h(T(z=e) - T_0) + L \left(\Phi(T_0) + \frac{\partial \Phi}{\partial T} \Big|_{T_0} (T(z=e) - T_0) \right)$$

with λ the thermal conductivity, $\Phi(T_0)$ the evaporative heat flux at T_0 , L the latent heat. Setting $H = h + L \frac{\partial \Phi}{\partial T} \Big|_{T_0}$, the global exchange coefficient, we obtain

$$-\lambda \frac{\partial T}{\partial z} \Big|_{(z=e)} = H(T(z=e) - T_0) + L\Phi(T_0)$$

At the end of the transient thermal regime, the temperature becomes steady and uniform again: the heat flux gained by convective transfer with the surroundings balances exactly the heat flux lost by evaporation. The temperature difference between the liquid and the surroundings is then $\Delta T_s = \frac{L\Phi(T_0)}{H}$. In cylindrical coordinates, the dimensionless boundary conditions write:

$$\text{at } r = A \text{ or } z = 0 \quad \begin{cases} \mathbf{u} = \mathbf{0} & \text{(no slip)} \\ \frac{\partial \Theta}{\partial \mathbf{n}} = 0 & \text{(adiabatic surfaces)} \end{cases}$$

$$\text{and at } z = 1 \quad \begin{cases} \frac{\partial(\mathbf{u} \cdot \boldsymbol{\tau})}{\partial z} = -\text{Ma} \frac{\partial \Theta}{\partial \tau} & \text{(thermocapillary stress)} \\ w = 0 & \text{(cf. [12])} \\ -\frac{\partial \Theta}{\partial z} = \text{Bi}(\Theta + 1) & \text{(energy balance)} \end{cases} \quad (2)$$

The dimensionless parameters $A = R/e$, $\text{Pr} = \nu/\alpha$, $\text{Ra} = g\beta\Delta T e^3/\mu\alpha$, $\text{Ma} = -\frac{\partial \gamma}{\partial T} e/\mu\alpha$ and $\text{Bi} = H/\alpha$ are the aspect ratio of the liquid film and the Prandtl, Rayleigh, Marangoni and Biot numbers, μ , ν , γ being the dynamic and kinematics viscosities and the surface tension coefficient respectively. The dimensionless parameters Pr , Ra , Ma and Bi depend on two physical control parameters used in experiments, namely the initial fluid thickness and the initial viscosity (which is a function of the polymer mass fraction [10]); the relations between control

Ma	Ra	Pr	Bi
5850 e/μ	451 e^3/μ	12 μ	0.2 e

Table 1. Relations between the dimensionless parameters and the thicknesses ($[e] = \text{mm}$) and viscosities ($[\mu] = \text{mPa}\cdot\text{s}$)

parameters and dimensionless numbers are given in Table 1.

For the $3D$ configuration, a pseudo-spectral method has been developed to solve the equations (1) with boundary conditions (2) in cylindrical coordinates (r, ϕ, z) [13]. The solution in the azimuthal direction has been expanded in Fourier series with 128 complex conjugate modes. The evaluations of the radial and axial space derivatives are based on Chebyshev collocation method with typically 181 Gauss-Radau and 20 Gauss-Lobatto points. Convective and advective terms are handled with a second order Adams Bashforth scheme, the diffusion contributions being implicitly treated. Velocity and pressure decoupling is achieved by projection algorithm. Computations are initialized with the fluid at rest and with small disturbances added to the uniform temperature field (cf. next section).

To study the sensitivity of the transient flow to the initial disturbances, a $2D$ model has also been used. The equations have been solved, in Cartesian geometry (x, z) , using finite volume discretization with second order space approximations. The rectangular liquid layer length $2A$ corresponds to the diameter of the container. The time discretization scheme and the pressure-velocity decoupling are similar to those used in $3D$ simulations.

3 Uncertainty model for the initial thermal condition

The stochastic approach proposed in this paper aims to introduce relevant uncertainties in the model in order to better take into account experimental conditions.

As previously said, the fluid is initially at rest, $\mathbf{u} = \mathbf{0}$, and perturbations are applied on the initial temperature only. The mean value of the resulting field is equal to the ambient temperature, i.e. zero in reduced variables. Using the subscript ξ to denote stochastic variables, the initial temperature field $\Theta_\xi(\mathbf{x}, t = 0)$ writes:

$$\Theta_\xi(\mathbf{x}, t = 0) = 0 + \theta_\xi(\mathbf{x})$$

The random variables ξ are here provided by a uniform and centered probability density function $p(\xi) = \sqrt{3}/6$ on $[-\sqrt{3}; \sqrt{3}]$ such that the mean value $E(\xi) = \int_{\mathbb{R}} \xi p(\xi) d\xi = 0$ and the variance $E(\xi^2) = \int_{\mathbb{R}} \xi^2 p(\xi) d\xi = 1$. The evolutions of the velocity and temperature are then analyzed by means of mean values and standard errors. These statistical quantities are computed by a Monte Carlo method which necessitates numerous deterministic simulations. The random samples are obtained by a Twister Mersenne algorithm [14]. Several stochastic models of $\theta_\xi(\mathbf{x})$ have been compared. The first model has been used for both $2D$ and $3D$ simulations and the others only in the $2D$ approach in Cartesian geometries, in order to limit computational time. For simplicity, equations are only given for the $2D$ -Cartesian configuration, with $-A \leq x \leq A$ and $0 \leq z \leq 1$.

1. The simplest idea consists in taking into account the uncertainties directly in the numerical scheme. To do this, we define the discrete initial condition so that a random value, defined by the probability law $p(\xi)$, is associated to each collocation node for the temperature. Using the finite volume method with $N_x + 1$ discrete x -coordinates $x_i = (2i - N_x)/N_x \times A$, $i = 0, \dots, N_x$ and $N_z + 1$ discrete z -coordinates $z_j = j/N_z$, $j = 0, \dots, N_z$, and two independent families of random variables $\{\xi_i, i = 0, \dots, N_x\}$ and $\{\xi_j, j = 0, \dots, N_z\}$ defined by $p(\xi)$, the stochastic initial condition writes:

$$\theta_\xi(x, z) = \frac{a\sqrt{3}}{6} \sum_{i=0}^{N_x-1} \sum_{j=0}^{N_z-1} H(x - x_i)H(x_{i+1} - x)H(z - z_j)H(z_{j+1} - z)\xi_i\xi_j \quad (3)$$

with $H(x)$ the Heaviside function and a the maximum magnitude of the disturbance. Such an approach is very easy to implement but may be questionable because of the non regularity of the initial thermal condition. Indeed spectral methods, and in a smaller extent finite volume methods, require regular solutions.

The gradients of the initial temperature diverge as a function of the mesh size, so that convergence analysis cannot be easily performed. Despite this point, this simple stochastic approach has been used for all computations performed with the spectral 3D code.

2. In order to guarantee the regularity of the initial thermal condition, we assume that disturbances are spatially correlated. This assumption is also physically relevant because the smallest patterns are necessarily driven by diffusion scales. For the sake of simplicity and considering the lack of information about physical disturbances, we suppose that the random thermal initial condition only depends on the horizontal coordinate x and is invariant in the z -direction. The stochastic initial condition is then expressed by a Karhunen-Loève decomposition [15]:

$$\theta_\xi(x, z) = \sum_{m=0}^{\infty} \sqrt{\beta_m} \xi_m \phi_m(x) \quad (4)$$

where $\{\phi_m(x)\}$ is a Hilbert base in $L^2([-A; A])$, $\beta_m > 0$ such that $\beta_{i+1} \leq \beta_i$ and $\lim_{n \rightarrow \infty} \beta_n = 0$, and $\{\xi_m\}$ is a family of random values defined by the probability law $p(\xi)$. The auto-correlation function $R(x, x')$ was chosen to enable analytical calculations:

$$R(x, x') = R_0 \exp\left(\frac{-|x - x'|}{\lambda}\right)$$

with λ the correlation length [16]. It can be shown that:

$$\begin{cases} \phi_n(x) = \mathcal{A}_n \cos(\omega_n x + \chi_n) \\ \mathcal{A}_n = \sqrt{\frac{2\omega_n}{2A\omega_n + \sin(2A\omega_n) \cos(2A\omega_n + 2\chi_n)}} \\ \beta_n = \frac{2\lambda R_0}{1 + \lambda^2 \omega_n^2} \\ \chi_n = -A\omega_n + \frac{n\pi}{2} \\ \tan\left(A\omega_n - \frac{n\pi}{2}\right) = \frac{1}{\omega_n \lambda} \end{cases} \quad (5)$$

3. The third stochastic model uses an uncorrelated disturbance similar to the first model, but only in x -direction. Like in the second model the random thermal initial condition is therefore invariant in z -direction.

$$\theta_\xi(x, z) = \frac{a\sqrt{3}}{6} \sum_{i=0}^{N_x-1} H(x - x_i) H(x_{i+1} - x) \xi_i \quad (6)$$

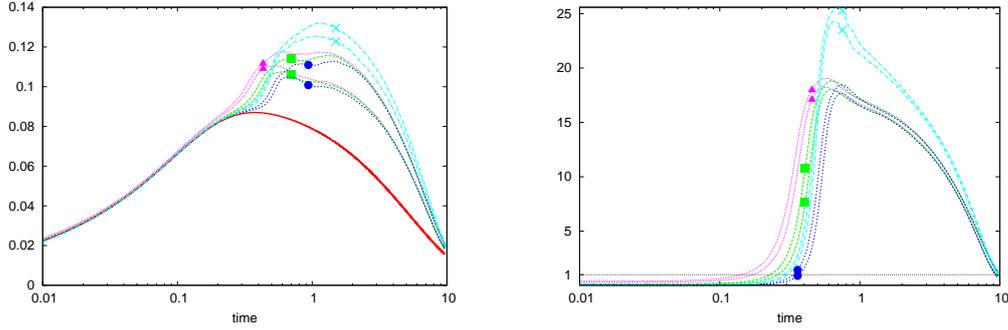
In order to introduce the same thermal energy (L_2 -norm) at the initial time, the intensity of the auto-correlation function fulfills the equality $R_0 = a^2/12$.

4 Results

4.1 Onset of convection

The results presented in this paragraph are obtained for $e = 1$ mm and $\mu = 3$ mPa.s and with $A = 10$. Statistics are achieved with 100 and 200 random shots in 3D and 2D, respectively.

Fig. 2 shows the transient behavior of the fluid and the comparison between the different stochastic models. Filled symbols and crosses stand for 2D- and 3D-simulations, respectively;



(a) Temperature difference $\Delta\Theta_{\max} = \max_x(\Theta(x, z = 0, t)) - \min_x(\Theta(x, z = 1, t))$ (b) Péclet number value $Pe = \max_x \|\mathbf{u}(\mathbf{x}, t)\|$

Fig. 2. Transient evolutions for $e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s and $A = 10$. The full line corresponds to the diffusion case ($Ra = Ma = 0$). Crosses stand for 3D-results with $A = 10$. Filled circles (Eq. (3)), triangles (Eqs. (4) and (5) with $\lambda = 1$) and squares (Eq. (6)) are 2D-results. For each symbol set, the area between the two curves corresponds to the uncertainty domain based on the mean value, plus and minus the standard error.

curves with the same symbols correspond to mean value plus or minus standard error. Fig. 2(a) presents $\Delta\Theta_{\max}$, the maxima of the temperature difference between the bottom and top of the fluid layer as a function of time. It must be emphasized that, when convection is on, these maxima are larger than in the pure diffusive regime (full line curve). This is linked to local effects. Indeed, once the flow is convective, the vertical thermal gradient at the free surface decreases in the regions where the fluid dives into the core bulk. The conduction being reduced at the interface (cf. Eq. (2)), the temperature at the free surface decreases due to the heat lost by evaporation (cf. negative values at $z = 1$ in Fig. 3). In contrast at the bottom, the temperature is larger than in the diffusive case when the fluid flows upward (cf. positive values at $z = 0$ in Fig. 3). Consequently, the maximum temperature difference between the bottom

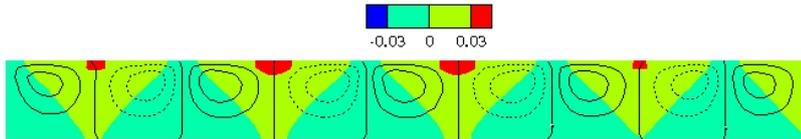


Fig. 3. Difference between the convective and conductive thermal fields and equally spaced streamlines, for $e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s, $-10 \leq x \leq 0$ and $t = 1$

and the interface increases beyond the diffusive value. This effect is more pronounced in the 3D model since the Péclet number is about 40% higher than in the 2D case. However the mean value of the temperature difference is always smaller in the convective regime than in the diffusive regime, as expected. The curves depart from the diffusive case when the convection becomes significant ($0.1 < t < 0.3$). These times correspond to a Péclet number close to one, i.e. when the thermal diffusion velocity and the maximum of the velocity are of the same order (Fig. 2(b)).

Several conclusions can be drawn from these results. Whereas the mean initial thermal energy was the same in the different stochastic models, convection arises earlier with correlated disturbances because the correlation length, $\lambda = 1$, is close to the natural wavelength of the convective cells (cf. Fig. 3). Disturbances based on uncorrelated random values (Eq. (3)) are

the less effective. However the use of the three stochastic models does not affect significantly the transient flow and heat transfer, what is in good agreement with [16] and justifies the use of the simple first stochastic approach. $2D$ and $3D$ simulations give rather close results. Although the maximum value of the Peclet number is 40% higher in the $3D$ case, the departure from the diffusive regime occurs more or less at the same time.

In a second step the influence of the perturbation amplitude on the onset of convection is studied. To characterize the presence of observable convection, a criterion based on the thermal Peclet number is chosen. Convection will be considered as significant if, when the system is submitted to an initial perturbation, there is a time t at which the perturbation is significantly amplified, i.e. such as $Pe = \max_{\mathbf{x}} |\mathbf{u}(\mathbf{x}, t)| > 1$. Results are presented in the viscosity-thickness map (Fig. 4), for the $3D$ model and for perturbation amplitudes varying on several orders of magnitude, $\sqrt{3} \cdot 10^{-9} \leq a \leq \sqrt{3} \cdot 10^{-3}$ (cf. Eq. (3)). As a comparison the thresholds computed with the $2D$ model by Touazi *et al.* [11] are also displayed. As is made clear in the figure, on

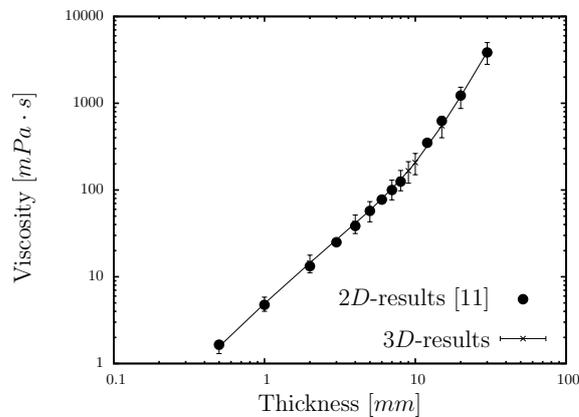


Fig. 4. Diffusion/convection transition as a function of the liquid thickness and viscosity, $A = 10$. In the $3D$ -model, the perturbations amplitude a (cf. Eq. (3)) ranges from $\sqrt{3} \cdot 10^{-9}$ to $\sqrt{3} \cdot 10^{-3}$.

the one hand the dispersion is small for the large explored range of perturbation amplitudes, on the other hand $2D$ and $3D$ simulations give close results.

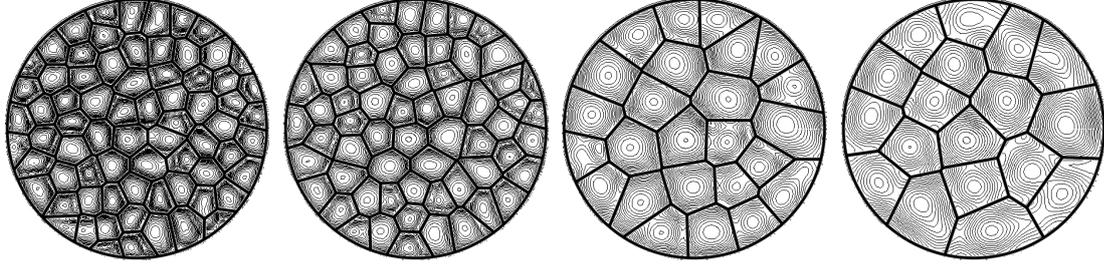
In conclusion, these results complete and confirm previous analyses concerning the onset of convection for the thermal transient regime [11,12]. Stability analysis is meaningful for this regime, in the sense that it is possible to characterize a thin transition region in the control parameters space between stable and unstable configurations. This region is not very sensitive to disturbance description (shape and amplitude) and is similar in $2D$ and $3D$ models.

At last, some simulations have been performed on $3D$ configurations of smaller aspect ratio. Thresholds are not very different, since a relative difference of less than 11% is obtained when reducing the aspect ratio from $A = 10$ to $A = 3$ and, of less than 43%, for a reduction from $A = 10$ to $A = 1$.

4.2 Convective patterns

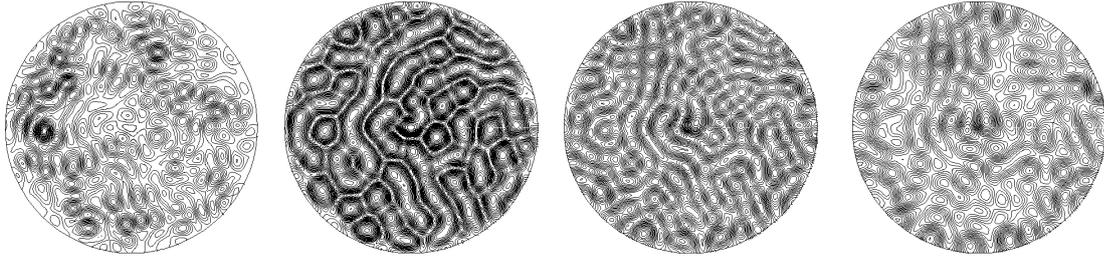
Unlike $2D$ simulations, the $3D$ configuration allows to describe more accurately the convective patterns and their time evolutions. Fig. 5 and Fig. 6 show the temperature field evolutions at the free surface for two configurations, $e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s and $e = 30$ mm, $\mu = 3500$ mPa.s respectively. Flow patterns are different for these two configurations. Indeed for small thickness corresponding to surface tension driven flow, cells are observed as in classical Rayleigh-Bénard-Marangoni studies [17]. They grow in time but become also less *active*, since Pe and $\Delta\theta_{\max}$

decrease for $t > 1$ (cf. Fig. 2 and Fig. 5). Additional patterns emerge for the largest thickness linked to buoyancy driven flow. The convective flow organizes itself into rolls (Fig. 6) [10].



(a) $t = 0.7$, $Pe = 22.95$, $\Delta\Theta_{\max} = 12 \times 10^{-2}$, $\Delta\Theta_{fs} = 7.44 \times 10^{-2}$, (b) $t = 1$, $Pe = 20.33$, $\Delta\Theta_{\max} = 13.2 \times 10^{-2}$, $\Delta\Theta_{fs} = 8.73 \times 10^{-2}$, (c) $t = 6$, $Pe = 7.77$, $\Delta\Theta_{\max} = 6.26 \times 10^{-2}$, $\Delta\Theta_{fs} = 3.55 \times 10^{-2}$, (d) $t = 8$, $Pe = 3.47$, $\Delta\Theta_{\max} = 3.57 \times 10^{-2}$, $\Delta\Theta_{fs} = 1.56 \times 10^{-2}$

Fig. 5. Iso-temperature levels and reconstructed cells at the interface, for several successive times, $e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s. The Peclet number Pe (cf. Fig. 2(b)), the maxima of temperature differences in the fluid layer $\Delta\Theta_{\max}$ (cf. Fig. 2(a)) and at the free surface $\Delta\Theta_{fs}$ are specified.



(a) $t = 0.2$, $Pe = 0.486$, $\Delta\Theta_{\max} = 0.66$, $\Delta\Theta_{fs} = 4.7 \times 10^{-3}$, (b) $t = 0.5$, $Pe = 14.04$, $\Delta\Theta_{\max} = 0.473$, $\Delta\Theta_{fs} = 17.9 \times 10^{-2}$, (c) $t = 0.8$, $Pe = 6.62$, $\Delta\Theta_{\max} = 0.273$, $\Delta\Theta_{fs} = 6.83 \times 10^{-2}$, (d) $t = 1.1$, $Pe = 2.3$, $\Delta\Theta_{\max} = 0.146$, $\Delta\Theta_{fs} = 2.23 \times 10^{-2}$

Fig. 6. Iso-temperature levels at the interface, for several successive times, $e = 30$ mm, $\mu = 3500$ mPa.s. The Peclet number Pe and maxima of temperature differences in the fluid layer $\Delta\Theta_{\max}$ and at the free surface $\Delta\Theta_{fs}$ are specified.

To get a more systematic characterization of capillary cells for $e = 1$ mm and $\mu = 3$ mPa.s, a reconstruction method has been developed. First, the positions the temperature maxima on the free surface are detected. Then the cell faces are defined as belonging to perpendicular bisectors between the nearest adjacent hot points. This analysis is performed with a Voronoi algorithm (cf. Fig. 5). Fig. 7 presents the evolution of the mean value of the cells size with its standard error. The mean cell size increases by a factor of about two while, as said above, convection fades away (Fig. 2(b)). For purpose of comparison, $2D$ results, for the same mean initial thermal energy, are also reported. The mean $2D$ wavelengths, $\overline{\lambda_{2D}}$, are defined by the couples of contra-rotating convective cells ($\overline{\lambda_{2D}} = (2A)/(2n)$ with $2A$ the cavity extension and n the number of cells). For $t > 0.5$, the mean sizes of $3D$ -capillary cells at the free surface are in good agreement with the $2D$ patterns. The $2D$ model seems to overestimate the wavelength of about 30% at the beginning of the drying. However, it is important to recall that the flow is then almost conductive and it is thus very difficult to characterize the cell size.

To go a little further in the characterization of the cell shapes and their time evolution during the transient thermal regime, cells coming from 100 different shots are classified with

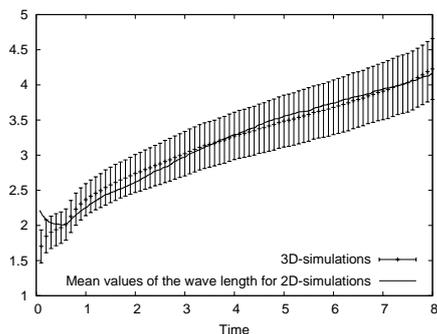


Fig. 7. Dimensionless cell size: mean values and standard errors

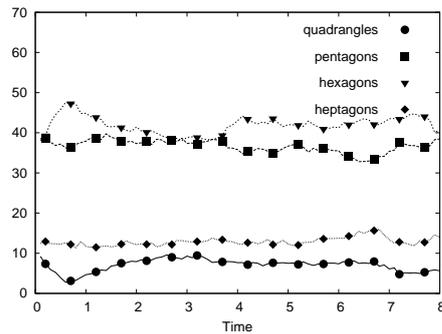
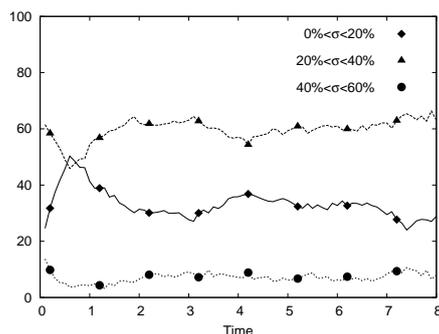


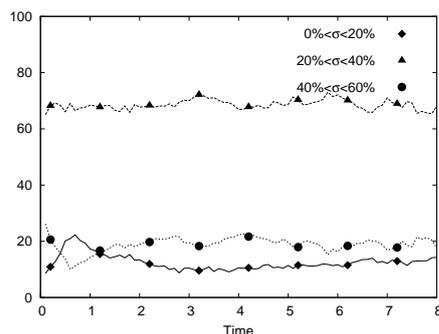
Fig. 8. Percentage of quadrangles, pentagons, hexagons and heptagons

respect to the number of edges as follows. For each cell, only edges greater than 0.1 times the largest side are considered. Cells in contact with the boundary are not taken into account. It can be seen in Fig. 8 that the majority of the patterns are pentagons and hexagons and the proportions do not evolve noticeably. The hexagonal shape is very usual in the classical Bénard-Marangoni configuration, provided that the aspect ratio of the liquid layer is large enough and the cells are far from lateral walls. Notice that pentagons and squares have also been observed in numerical and experimental studies in case of square containers [17].

The present categorization of flow structures is only based on geometrical considerations but the observed patterns can differ substantially from their ideal shapes (edges of same length) as obtained in the steady Bénard-Marangoni problem [17]. To measure the departure of each cell from its regular polygon shape, the following procedure is used. For a hexagonal cell for instance, we measure its area and define the reference regular hexagon having the same area. The cell is divided up into six triangles with the cell center as apex and the six cell edges as base of the triangles. Then the standard error σ between the area of the reference triangle (1/6 of the hexagon area) and the six triangles of the cell is computed and used to characterize the cell regularity. Results are given in Fig. 9. The percentage of cells having a standard error in



(a) Pentagonal cells



(b) Hexagonal cells

Fig. 9. Evolution of the regularity measured by standard error with respect to regular pentagons or hexagons. $e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s.

the range [20%;40%] is about 60% all along the evolution of the transient regime. The cells induced by evaporation with random initial conditions are less regular than those observed in the usual steady Bénard-Marangoni configuration. Notice however that, more regular cells are recovered if initial conditions are smooth or well structured in space, but this necessitates a very accurate control of the initial condition, what is really hard to achieve in experimental setups.

5 Conclusion

The thermal transient regime, occurring at the beginning of the drying of a polymer/solvent solution, has been studied numerically. A particular attention has been paid to the impact of the initial conditions by means of several stochastic models of perturbations. The main result is that it is possible to characterize a thin transition region between stable and unstable configurations and this region is not very sensitive to the shape and amplitude of the disturbance. The onset of convection has been determined, with $2D$ and $3D$ models, for a large range of initial thicknesses and viscosities. The results complete and confirm previous $2D$ stability analysis. $2D$ and $3D$ thresholds are not very different. The $3D$ model has also been used to characterize the flow pattern evolution during the drying. In the case of convection driven by surface tension, tools have been developed in order to accurately describe the cell morphology. It is shown that cells are mostly non-regular pentagons or hexagons. The cell size increases during the drying while convection fades away.

The next step of this study will concern the transient solutal convection. This problem is more complex since it implies to take into account both thickness reduction and viscosity increase.

Acknowledgment

This work has been supported by the "Fédération TMC (Ministère de l'Enseignement supérieur et de la Recherche, France)"

References

1. J. Pearson, *J. Fluid Mech.* **4**, 489 (1958)
2. F. Busse, *Rep. Prog. Phys.* **41**, 1930 (1978)
3. J. Reichenbach, H. Linde, *J. of colloid and interface science* **84**, 433 (1981)
4. D. Goussis, R. Kelly, *Int J. Heat Mass Transfer* **33**, 2237 (1990)
5. P. Colinet, J.C. Legros, M.G. Velarde, *Nonlinear Dynamics of Surface-Tension-Driven Instabilities* (Wiley-VCH, 2001)
6. D. Merkt, M. Bestehorn, *Physica D* **185**, 196 (2003)
7. P. Colinet, L. Joannes, C.S. Iorio, B. Haute, M. Bestehorn, G. Lebon, J.C. Legros, *Advances in Space Research* **32**(2), 119 (2003)
8. O. Ozen, R. Narayanan, *Phys. Fluids* **16**, 4644 (2004)
9. C. Moussy, G. Lebon, J. Margerit, *Eur. Phys. J. B* **40**, 327 (2004)
10. G. Toussaint, H. Bodiguel, F. Doumenc, B. Guerrier, C. Allain, *Int. J. Heat Mass Transfer* **51**, 4228 (2008)
11. O. Touazi, E. Chénier, F. Doumenc, B. Guerrier, *IJHMT* **53**, 656 (2010)
12. F. Doumenc, T. Boeck, M. Rossi, B. Guerrier, *JFM* **648**, 521 (2010)
13. O. Bouizi, C. Delcarte, *International Journal for Numerical Methods in Fluids* **50** (2006)
14. M. Matsumoto, T. Nishimura, *ACM Trans. on Modeling and Computer Simulation* **8** (1998)
15. Y. Rozanov, *Processus aléatoires* (MIR, Moscou, 1975)
16. E. Chénier, C. Desceliers, C. Delcarte, B. Trouette, F. Doumenc, B. Guerrier, *Sensitivity of diffusive-convective transition to the initial conditions in a transient Bénard-Marangoni problem*, in *International Heat Transfer Conference, IHTC14* (2010)
17. M. Médale, P. Cerisier, *Numerical Heat Transfer, Part A* **42**, 55 (2002)

Table des figures

1	(a) Evolution de la viscosité en fonction de la fraction volumique de polymère [31]. (b) Exemple d'évolution du flux d'évaporation au cours du temps pour une solution de PIB/Toluène. Données expérimentales (Fast et [65]). Paramètres : épaisseur initiale de 4 mm et $\varphi_p = 0.05\%$	5
2	Exemple de champs de température observés avec une caméra IR. Des cellules de convection sont visibles. Le fluide chaud remonte au centres de cellules (couleurs claires, températures chaudes), puis redescend en périphérie (couleurs sombres, température froides). Configuration expérimentale (caméra IR, Fast). Paramètres : $e_i = 8$ mm et $\varphi_p = 0.05\%$	6
3	Carte d'observation expérimentale de la convection en fonction de l'épaisseur et de la viscosité de la solution. Les cercles représentent les cas pour lesquels un état convectif est observé (avec caméra IR ou traceurs). (carte extraite de [65]).	7
1.1	Schéma du domaine d'étude	14
1.2	Schéma de l'algorithme utilisé.	22
1.3	$\log_{10}(\xi_n)$ en fonction de $\log_{10}(n)$, pour des conditions aux limites de type Dirichlet (D) et Neumann (N), différentes valeurs de N_r et $m = 4$	24
1.4	$\log_{10}(\Re(\xi_n))$ et $\log_{10}(\Im(\xi_n))$ (lorsque $ \Im(\xi_n) \neq 0$) en fonction de $\log_{10}(n)$, pour des conditions aux limites de type Dirichlet (D) et Neumann (N), $N_r = 128$ et $m = 11$	24
1.5	Les m donnant la première valeur propre complexe de l'opérateur polaire discret.	25
1.6	Disposition des x_i en fonction de $i = 0, \dots, N_r$ et pour différents α . $N_r = 60$	26
1.7	Les m donnant les premières valeurs propres complexes conjuguées de l'opérateur polaire discret.	27
1.8	Différence relative $\left \frac{\xi_n^{(\alpha)} - \xi_n}{\xi_n} \right $ des différents spectres, dans le cas Neumann et avec $N_r = 128$, $m = 4$ pour différentes valeurs de α	28
1.9	Lois d'échelles en $\mathcal{O}(N^\beta)$ des valeurs propres maximales, dans une cas Neumann, sans mapping et avec pour une valeurs de $\alpha = 0.9999999999$. Elles suggèrent des lois asymptotiques $\max_n \xi_n \simeq \mathcal{O}(N_r^4)$ et $\max_n \xi_n^{(\alpha)} \simeq \mathcal{O}(N_r^2)$ si $\alpha \rightarrow 1$	29
1.10	Erreur relative maximum E , $m = 4$	30
1.11	Courbe de stabilité de l'état conductif [10, 11] : nombre de Rayleigh critique (Ra_c) en fonction du facteur de forme ($A = \Gamma$).	31

1.12	Motifs obtenus dans différentes configurations. Comparaison avec l'analyse de stabilité lineaire. Champ de température à mi-hauteur, $Pr = 1$. (a) $A = 1.5$, $Ra = 1900$. (b) $A = 1.8$, $Ra = 1850$. (c) $A = 2.1$, $Ra = 1850$	31
1.13	Champs de température en surface libre. De gauche à droite, cas 1, 2 et 3. De haut en bas : Configuration expérimentale (Koschmieder et Prahl [40]), simulation numérique (Médale et Cerisier [48]) et notre simulation numérique.	33
1.14	Iso lignes de vitesse axiale (traits pleins) et erreur relative E_{ij} (contours), pour $\alpha = 0.9$. ($Ma = 106$ et $Pr = 10^{-2}$).	34
2.1	Exemple de construction d'un maillage de Voronoï dans un cas général. Dans notre cas les points pourraient représenter les différents centres des cellules de convection.	36
2.2	Evolution des extréma de température adimensionnée dans le cas diffusif. ($e = 1$ mm, contraintes nulles : $Ra = 0$ et $Ma = 0$).	39
2.3	(a) Evolution temporelle de $\Delta\Theta_{\max}$ (échelle logarithmique en temps). (b) échelle logarithmique en temps et en amplitude. ($e = 1$ mm.)	40
2.4	Temps d'obtention de l'état final homogène t_h (température dimensionnée homogène avec quatre chiffres significatifs) en fonction de l'épaisseur (en millimètres).	40
2.5	(a) Vitesse axiale dans un plan de coupe vertical pour différents temps; (b) Evolution temporelle de la vitesse maximale $\max\ \mathbf{u}(t)\ $. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	41
2.6	Evolution temporelle de la vitesse maximale pour différentes viscosités $\mu \in [3; 50]$ mPa.s et, en trait plein, le critère définissant l'état convectif $Pe = 1$. ($e = 1$ mm, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	42
2.7	Evolution du champ de température remis à l'échelle entre -0.5 et 0.5 au cours du temps. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	43
2.8	Iso-contours de température en surface libre pour différents temps. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	43
2.9	(a) Evolution temporelle de $\Delta\Theta_{\max}$ (courbe pointillée) et superposition avec le cas diffusif (courbe pleine); (b) Evolution temporelle des maxima locaux de température en surface libre. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	44
2.10	Différence entre les champs de température convectif et diffusif ($\Theta_{cv} - \Theta_{diff}$), dans un plan de coupe vertical passant par l'axe de la cavité. Les iso-lignes de vitesse axiale sont représentées (traits pleins pour des valeurs positives, pointillés pour des valeurs négatives). Le temps est $t = 1$. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s et $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	44
2.11	(a) Evolution temporelle de $\Delta\Theta_{\max}$ (échelle logarithmique en temps). (b) échelle logarithmique en temps et en amplitude. ($e = 30$ mm)	45
2.12	(a) Vitesse axiale dans un plan de coupe vertical pour différents temps; (b) Evolution temporelle de la vitesse maximale. ($e = 30$ mm, $\mu = 3500$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	45
2.13	Evolution temporelle de la vitesse maximale pour différentes viscosités $\mu \in [3500; 10000]$ mPa.s et, en trait plein, le critère définissant l'état convectif $Pe = 1$. ($e = 30$ mm et $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	46

2.14	Evolution du champ de température remis à l'échelle entre -0.5 et 0.5 au cours du temps. ($e = 30$ mm, $\mu = 3500$ mPa.s et $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.) . . .	46
2.15	Iso contours de températures en surface libres pour différents temps. ($e = 30$ mm, $\mu = 3500$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	47
2.16	(a) Evolution temporelle de $\Delta\Theta_{\max}$ (courbe pointillée) et superposition avec le cas diffusif (courbe pleine); (b) Evolution temporelle des extréma locaux de température en surface libre. ($e = 30$ mm, $\mu = 3500$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	47
2.17	Evolution temporelle, en échelles logarithmiques, (a) de $Pe = \max \ \mathbf{u}\ $ pour différentes valeurs de la perturbation initiale; (b) de $\max \ \mathbf{u}\ / \max \ \mathbf{u}(t = 0)\ $. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s et $A = 10$.)	48
2.18	Evolution temporelle, en échelles logarithmiques, (a) de $Pe = \max \ \mathbf{u}\ $ pour différentes valeurs de la perturbation initiale; (b) de $\max \ \mathbf{u}\ / \max \ \mathbf{u}(t = 0)\ $. ($e = 1$ mm, $\mu = 5.8$ mPa.s et $A = 10$.)	49
2.19	(a) Evolution temporelle moyennée de $\overline{Pe} = \overline{\max \ \mathbf{u}\ }$ et de son écart type. (b) Evolution temporelle moyennée de l'écart maximal de température $\overline{\Delta\Theta_{\max}}$ et son écart type, et comparaison avec la solution diffusif (courbe pleine). ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	50
2.20	Evolution temporelle moyennée de $\overline{Pe} = \overline{\max \ \mathbf{u}\ }$ et son écart type associé. ($e = 1$ mm, $\mu = 5.8$ mPa.s et $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	50
2.21	(a) Evolution temporelle moyennée de $\overline{Pe} = \overline{\max \ \mathbf{u}\ }$ ainsi que de son écart type pour $\mu = 3500$ mPa.s et (b) pour $\mu = 4900$ mPa.s. ($e = 30$ mm et $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	51
2.22	Position et référencement des perturbations initiales de type gaussienne d'écart type $\sigma = 0.1$. La forme de la perturbation initiale pourra être choisie axi-symétrique (a), symétrique (b et c) ou non symétrique (d). . . .	52
2.23	Evolution de $Pe = \max \ \mathbf{u}\ $ pour différentes perturbations initiales ponctuelles. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s et $A = 2.5$.)	53
2.24	Iso-contours de température en surface libre à $t = 1$ pour différentes perturbations initiales de type gaussienne appliquées en surface libre. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s et $A = 2.5$.)	53
2.25	Iso-contours de température en surface libre à $t = 5$ pour différentes perturbations initiales de type gaussienne appliquées en surface libre. De haut en bas pour un facteur de forme $A = 5$ (haut) et $A = 10$ (bas). ($e = 1$ mm et $\mu = 3$ mPa.s.)	53
2.26	Iso-contours de température en surface libre à $t = 0.7$ pour différentes perturbations initiales de type gaussienne appliquées en surface libre. ($e = 30$ mm, $\mu = 3500$ mPa.s et $A = 2.5$.)	54
2.27	Carte d'apparition de la convection pour les différents régimes considérés (BM, RM et RBM). ($a = 10^{-3}$ et $A = 10$.)	55
2.28	Seuils de transition calculés pour différentes amplitudes ($a = 10^{-3}$, 10^{-6} et 10^{-9}) dans une configuration RBM. (Distribution aléatoire fixée et $A = 10$.)	56
2.29	Seuils de transition calculés pour différents facteurs de forme ($A = 10$, 3 et 1) et dans une configuration RBM. (Distribution aléatoire fixée et $a = 10^{-3}$.)	57
2.30	Seuils de transition diffusif-convectif et données expérimentales ([65]). (Distribution aléatoire fixée, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	58

2.31	Courbes de stabilité obtenues en configuration RBM avec les modèles bi-dimensionnel cartésien [64] (points verts), tri-dimensionnels (ce travail, courbe rouge) et MNN [26] (zone encadrée par les courbes bleus). ($A = 10$ et $a \in [10^{-9}; 10^{-3}]$.)	58
2.32	Nombre de Marangoni et temps de transition. 3D (courbe rouge). MNN : Cercles : critère sur la température ($G_T^* = 1$). Ronds : Critère sur la vitesse ($G_v^* = 1$). ($Pr = 10$ et $Ra = 0.$)	59
2.33	Evolution temporelle du nombre moyen de cellules. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	60
2.34	Iso-contours de température en surface libre et décomposition de Voronoï associée pour différents temps. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	61
2.35	Iso-contours de température en surface libre et décomposition de Voronoï associée pour différents facteurs de forme. ($t = 1.5$, $e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.set $a = 10^{-3}$.)	61
2.36	Longueur d'onde estimée avec la décomposition de Voronoï. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	62
2.37	Evolution temporelle du pourcentage de quadrangles, pentagones, hexagones et heptagones. ($e = 1$ mm, $\mu = 3$ mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	62
2.38	Passage de la structure irrégulière à régulière. Les aires des polygones sont les mêmes. Le triangle hachuré de la structure irrégulière est comparé au triangle régulier.	63
2.39	Régularité des structures de type (a) quadrangulaire, (b) pentagonale, (c) hexagonales, (d) heptagonales.	64
2.40	(a) Nombre de cellules Nb en fonction de A^2 pour différents temps. (b) Evolution temporelle de la longueur d'onde pour différents facteurs de forme. Les barres d'erreurs représentent l'écart type.	65
2.41	Cas n° 1. Evolution des vitesses. (a) Pour différentes valeurs de l'amplitude ($a \in [10^{-12}; 10^{-3}]$ et $t < 8$ secondes). (b) Pour $a = 10^{-9}$ ($t < 100$ secondes).	66
2.42	Cas n° 1. Champ de température dans la couche pour différents temps. ($a = 10^{-9}$ et $A = 5.$)	67
2.43	Evolution des vitesses cas n° 2 et 3. Le critère définissant la convection est représenté.	68
2.44	Cas n° 2. Champ de température dans la couche pour différents temps. ($a = 10^{-9}$ et $A = 4.$)	69
2.45	Cas n° 3. Champ de température dans la couche pour différents temps. ($a = 10^{-9}$ et $A = 5.$)	69
3.1	Configuration bi-dimensionnelle	76
3.2	Domaine de calcul	83
3.3	Maillage décalé. $i = 1, \dots, (N_x + 1)$ et $j = 1, \dots, (N_z + 1)$	85
3.4	Schéma de l'algorithme utilisé.	86
3.5	Evolution en échelle logarithmique des erreurs relatives spatiale (colonne de gauche) et temporelle (colonne de droite). De haut en bas pour les variables u , w , p et φ_s . ($A_i = 1$, $t = 0.2$ et $Pe_{int} = 4$)	92
3.6	Evolution en échelle logarithmique des erreurs relatives spatiale (colonne de gauche) et temporelle (colonne de droite). De haut en bas pour les variables u , w , p et φ_s . ($A_i = 1$, $t = 0.2$ et $Pe_{int} = 0.01$)	93

4.1	Evolution temporelle de φ_s pour les différents cas tests.	96
4.2	Schéma milieu semi-infini	97
4.3	Profil de concentration dans la couche de fluide pour différents temps, en fonction de l'abscisse adimensionnée. (Problème diffusif, $\varphi_{si} = 0.953$ et $Pe_{int} = 24$)	99
4.4	Evolution de la concentration en solvant au niveau de la surface libre pour différentes valeurs de la concentration initiale. ($Pe_{int} = 24$).	99
4.5	Convection BM, viscosité variable. A gauche : champs de viscosité auquel sont superposées les lignes de courants pour différents temps. A droite : valeur du champ de concentration en surface libre pour différents temps. (Paramètres : $A_i = 10$, $\varphi_{si} = 0.99$, $Ma = 4950$, $Ra = 0$, $Pe_{int} = 10$, $Sc = 10$, viscosité variable et $a = 10^{-6}$.)	102
4.6	Convection RB, viscosité variable. A gauche : champs de concentration auquel sont superposées les lignes de courants pour différents temps. A droite : valeur du champ de concentration en surface libre pour différents temps. (Paramètres : $A_i = 10$, $\varphi_{si} = 0.99$, $Ma = 0$, $Ra = 4.73 \times 10^5$, $Pe_{int} = 10$, $Sc = 10$, viscosité variable et $a = 10^{-6}$.)	103
4.7	Convection BM, viscosité variable. (a) Evolution temporelle de la vitesse moyenne $\ \mathbf{v}\ _2$ et écart type, la courbe droite représente le critère convectif; (b) Evolution temporelle de $\overline{\Delta\varphi_s}$ et écart type, la courbe pleine représente la solution diffusive. (Paramètres : $A_i = 10$, $\varphi_{si} = 0.99$, $Ma = 4950$, $Ra = 0$, $Pe_{int} = 10$, $Sc = 10$, viscosité constante et $a = 10^{-6}$.)	105
4.8	Cas n° 1. (a) Evolution temporelle de la vitesse adimensionnée pour plusieurs amplitudes de la perturbation initiale. Echelle logarithmique. (b) Evolution temporelle de $\Delta\varphi_s$ pour plusieurs amplitudes de la perturbation initiale et superposition avec l'état diffusif. ($A_i = 10$.)	106
4.9	Cas n° 1. Evolution temporelle des vitesses normalisées par leur valeur au temps initial. ($A_i = 10$.)	107
4.10	Convection BM. Seuils et temps de transitions en fonction de l'amplitude de la perturbation initiale. Ronds : viscosité constante; Triangles : viscosité variable. ($a \in [10^{-8}; 10^{-4}]$, $A_i = 10$, $Ra = 0$, $Sc = 10$ et $\varphi_{si} = 0.953$.)	108
4.11	Convection RB. Seuils de transitions et temps critiques en fonction de l'amplitude de la perturbation initiale. Ronds : viscosité constante; Triangles : viscosité variable. ($a \in [10^{-8}; 10^{-4}]$, $A_i = 10$, $Ma = 0$, $Sc = 10$ et $\varphi_{si} = 0.953$.)	109
4.12	Convection BM. Nombre de Marangoni critique Ma_c en fonction du nombre de Schmidt ($Ra = 0$, $Pe_{int} = 1$, $\varphi_{si} = 0.953$ et $a = 10^{-6}$.)	110
4.13	Convection RB. Nombre de Rayleigh critique Ra_c en fonction du nombre de Schmidt ($Ma = 0$, $Pe_{int} = 1$, $\varphi_{si} = 0.953$ et $a = 10^{-6}$.)	111
4.14	Convection BM, viscosité constante. (a) Seuils de transition; (b) temps critique t_c (ronds) et limite t_{lim} (triangles) pour différentes fractions initiales de solvant. ($A_i = 10$, $Sc = 10$, $Ra = 0$ et $a = 10^{-3}$.)	111
4.15	Convection RB, viscosité constante. (a) Seuils de transition; (b) temps critique t_c (ronds) et limite t_{lim} (triangles) pour différentes fractions initiales de solvant. ($A_i = 10$, $Sc = 10$, $Ra = 0$ et $a = 10^{-3}$.)	112
4.16	Convection BM, viscosité variable. $Ma_c = f(Pe_{int})$ pour différentes fraction initiales de solvant. ($A_i = 10$, $Ra = 0$, $Sc = 10$ et $a = 10^{-6}$.)	113

4.17	Convection RB, viscosité variable. $Ra_c = f(Pe_{int})$ pour différentes fraction initiales de solvant. ($A_i = 10$, $Ma = 0$, $Sc = 10$ et $a = 10^{-6}$.)	113
4.18	Carte de stabilité de l'écoulement dans des configuration RB et BM pour une solution de PIB/Toluène. ($v_{evap} = 3 \times 10^{-3}$ m/s.)	114
4.19	Carte de stabilité. Les seuils de transition solutaux sont pour une viscosité variable. (Solution de PIB/Toluène)	115
4.20	Cas n° 1. (a) Evolution temporelle de $\ \mathbf{v}\ _2$. Comparaison des viscosités constante (vert) et variable (rouge). (b) Evolution des viscosités moyennes $\langle \mu \rangle$ en surface libre ($z = e(t)$) et au fond de la cavité ($z = 0$). ($A_i = 10$ et $a = 10^{-9}$.)	118
4.21	Cas n° 1. Evolution temporelle de la fraction volumique de solvant mise à l'échelle entre les valeurs minimale et maximale pour chaque temps. (Blanc : fortes concentrations, bleu : faibles concentrations. $A_i = 10$ et $a = 10^{-9}$.)	119
4.22	Cas n° 1. Evolution temporelle de la fraction volumique de solvant mise à l'échelle entre les valeurs minimales et maximales pour chaque temps. (Blanc : fortes concentrations, bleu : faibles concentrations. $A_i = 10$ et $a = 10^{-9}$.)	120
4.23	Cas n° 1. Profils de fraction volumique de solvant au niveau de l'interface pour différents temps : $t = 6 \times 10^{-4}$, $t = 3.4 \times 10^{-3}$ et $t = 1 \times 10^{-1}$. ($A_i = 10$ et $a = 10^{-9}$)	121
4.24	Cas n° 1. Densité spectrale d'énergie (DSE) en fonction de la longueur d'onde λ pour différents temps : $t = 6 \times 10^{-4}$, $t = 3.4 \times 10^{-3}$ et $t = 1 \times 10^{-1}$. ($A_i = 10$ et $a = 10^{-9}$)	121
4.25	Cas n° 1. Evolution temporelle du nombre de structures dans la cavité.	122
4.26	Cas n° 2. Evolution temporelle de la vitesse et viscosité. $A_i = 10$, et $a = 10^{-9}$	123
4.27	Cas n° 2. Evolution temporelle de la fraction volumique de solvant mise à l'échelle entre les valeurs minimale et maximale pour chaque temps. (Blanc : fortes concentrations, bleu : faibles concentrations, $A_i = 10$ et $a = 10^{-9}$.)	124
4.28	Cas n° 2. Evolution temporelle de la fraction volumique de solvant mise à l'échelle entre les valeurs minimale et maximale pour chaque temps. (Blanc : fortes concentrations, bleu : faibles concentrations, $A_i = 10$ et $a = 10^{-9}$.)	125
4.29	t_h et t_{lim} en fonction de l'épaisseur initiale de la solution	126
4.30	Cas n° 1. Comparaison des temps d'apparition ainsi que des vitesse et longueurs d'ondes engendrées par les deux modèles. Le temps de recouvrement entre les deux phénomènes de transferts est très faible, quelques secondes, comparé à la plage de temps parcourue (3000 secondes).	127
4.31	Cas n° 2. Comparaison des temps d'apparition ainsi que des vitesse et longueurs d'ondes engendrées par les deux modèles.	127

Liste des tableaux

1.1	Tableau récapitulatif des différents paramètres du problème (valeurs correspondant à une expérience typique, exprimées en unité S.I.)	15
1.2	Correspondance entre les paramètres adimensionnés et le couple épaisseur/viscosité (e en mm et μ en mPa.s et dans le cas d'une solution de PIB/Toluène).	18
1.3	Cas tests effectués en configuration Rayleigh-Bénard cylindrique et mode azimuthal dominant (déduts de la figure 1.11).	31
1.4	Tableau récapitulatif des différents paramètres utilisés dans la configuration RBM.	32
2.1	Encadrement de la viscosité critique, pour deux distributions aléatoires différentes (D^+ et D^-), dans le cadre d'une configuration RBM. (e en mm, μ en mPa.s, $A = 10$ et $a = 10^{-3}$.)	56
2.2	Caractéristiques et échelles des différents cas. τ et \mathcal{U} sont les échelles caractéristiques de temps et de vitesse.	66
2.3	Cas n° 1. Comparaison des données	67
2.4	Cas n° 2. Comparaison des données	69
2.5	Cas n° 3. Comparaison des données	69
3.1	Tableau récapitulatif des différents paramètres du problème solutal (valeurs correspondant à une experience typique, exprimées en unité S.I.)	78
4.1	Tableau récapitulatifs des cas tests correspondant à l'expérience.	95
4.2	Cas n° 1. Comparaison des temps critiques et estimation de l'erreur par rapport à la solution diffusive.	107
4.3	Caractéristiques solutales et échelles des différents cas. τ et \mathcal{V} sont respectivement les échelles de temps et de vitesse du modèle solutal.	116
4.4	Cas n° 1. Comparaison des grandeurs caractéristique obtenues avec les modèles thermique et solutal.	126
4.5	Cas n° 2. Comparaison des grandeurs caractéristique obtenues avec les modèles thermique et solutal.	127

Bibliographie

- [1] M.R. Abril-Raymundo and B. García-Archilla. Approximation properties of a mapped Chebyshev method. *Applied Numerical Mathematics*, 32, 2000.
- [2] N. Bassou and Y. Rharbi. Role of Bénard-Marangoni Instabilities during Solvent Evaporation in Polymer Surface Corrugations. *Langmuir*, 25 :624–632, 2009.
- [3] A. Batoul. *Simulation numérique d'écoulements thermocapillaires en croissance cristalline*. PhD thesis, Université Paris-Sud XI, 1995.
- [4] A. Batoul, H. Khallouf, and G. Labrosse. Une Méthode de Résolution Directe (Pseudo-Spectrale) du Problème de Stokes 2D/3D Instationnaire. Application à la Cavité Entraînée Carrée. *C.R. Acad. Sci. Paris*, 319(I) :1455–1461, 1994.
- [5] A. Bejan. *Convection Heat Transfert*. John Wiley and Sons Inc., New York, NY, 1984.
- [6] H. Bénard. Les tourbillons cellulaires dans une nappe liquide transportant la chaleur par convection en régime permanent. *Ann. Chim. Phys.*, 23 :62–144, 1901.
- [7] J. C. Berg, M. Boudart, and A. Acrivos. Natural convection in pools of evaporating liquids. *J. Fluid Mech.*, 24 :721–735, 1966.
- [8] A. Bergeon, D. Henry, and E. Knobloch. Three-dimensional Marangoni–Bénard flows in square and nearly square containers. *Phys. Fluids*, 13(1) :92–98, 2001.
- [9] A. Bergeon and E. Knobloch. Oscillatory Marangoni convection in binary mixtures in square and nearly square containers. *Phys. Fluids*, 16(2) :360–372, 2004.
- [10] K. Borońska. *Three-dimensional patterns in cylindrical Rayleigh–Bénard convection*. PhD thesis, Université Paris 7 - Denis Diderot, 2005.
- [11] K. Borońska and L. Tuckerman. Standing and travelling waves in cylindrical Rayleigh–Bénard convection. *J. Fluid Mech.*, pages 279–298, 2006.
- [12] O. Bouizi. *Instabilités 3D de convection thermocapillaire en zone-flottante*. PhD thesis, Université Paris-Sud XI, 2004.
- [13] J. Boussinesq. *Théorie Analytique de la Chaleur, mise en harmonie avec la Thermodynamique et avec la Théorie Mécanique de la lumière*. Gauthier-Villars, 1903.
- [14] J.P. Boyd. *Chebyshev and Fourier Spectral Methods*. Dover, New York, 2001.
- [15] C. Canuto, Y. Hussaini, A. Quarteroni, and T.A. Zang. *Spectral Methods in Fluid Dynamics*. Springer Series in Computational Physics. Springer-Verlag, New York, 1988.
- [16] S. Chandrashekhar. *Hydrodynamic and Hydromagnetic Stability*. International Series of Monographs on Physics. Dover, Oxford, England, 1961.

- [17] E. Chénier, C. Delcarte, G. Kasperski, and G. Labrosse. Sensitivity of the liquid bridge hydrodynamics to local capillary contributions. *Phys. Fluids*, 14(9) :3109–3117, 2002.
- [18] E. Chénier, C. Delcarte, G. Kasperski, and G. Labrosse. Thermocapillary flows and vorticity singularity, Interfacial Fluid Dynamics and Transport Process. In R. Narayanan and D. Schwabe, editors, *Lecture Notes in Physics*, volume 628. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 2003.
- [19] E. Chénier, C. Delcarte, and G. Labrosse. Stability of the axisymmetric buoyant-capillary flows in a laterally heated liquid bridge. *Phys. Fluids*, 11(3) :524–541, 1999.
- [20] E. Chénier, C. Desceliers, C. Delcarte, B. Trouette, F. Doumenc, and B. Guerrier. Sensitivity of diffusive-convective transition to the initial condition in a transient Bénard-Marangoni problem. In *International Heat Transfert Conference*, 2010.
- [21] A.J. Chorin. Numerical Simulation of the Navier-Stokes equations. *Math. Comp.*, 22 :754–762, 1968.
- [22] P. Colinet, J.C. Legros, and M.G. Verlade. *Nonlinear Dynamics of Surface-Tension-Driven Instabilities*. Wiley-VCH, Berlin, 2001.
- [23] E. L. Cussler. *Diffusion. Mass Transfer in Fluid Systems*. Cambridge University Press, 1986.
- [24] M. Dondlinger, J. Margerit, and P.C. Dauby. Weakly nonlinear of Marangoni instabilities in an evaporating liquid layer. *Journal of colloid and interface science*, 283 :522–532, 2005.
- [25] J. Donea, A. Huerta, J.-Ph. Ponthot, and A. Rodríguez-Ferran. Arbitrary Lagrangian-Eulerian Methods. In René de Borst Erwin Stein and Thomas J.R. Hughes, editors, *Encyclopedia of Computational Mechanics. Volume 1 : Fundamentals*. John Wiley & Sons. Ltd, 2004.
- [26] F. Doumenc, T. Boeck, B. Guerrier, and M. Rossi. Rayleigh-Bénard-Marangoni convection due to evaporation : a linear non-normal stability analysis. *J. Fluid Mech.*, 2010.
- [27] F. Doumenc, B. Guerrier, and C. Allain. Mutual Diffusion Coefficient and Vapor-Liquid Equilibrium Data dor the System Polyisobutylene + Toluene. *J. Chemical Engineering Data*, 50 :983–988, 2005.
- [28] K. Eckert, M. Bestehorn, and A. Thess. Square cells in surface-tension-driven Bénard convection : experiment and theory. *J. Fluid Mech.*, 356 :155–197, 1998.
- [29] T.D Foster. Stability of a homogeneous fluid cooled uniformly from above. *Phys. Fluids*, 8 :1249–1257, 1965.
- [30] P.G. De Gennes. Instabilities during the evaporation of a film. Non-glassy polymer + volatile solvent. *The European Physical Journal E*, 6 :421–424, 2001.
- [31] Y. Gorand, F. Doumenc, B. Guerrier, and C. Allain. Instabilités de plissement lors du séchage de films polymères plans. *Rhéologie*, 3 :22–29, 2003.
- [32] P. Haldenwang, G. Labrosse, S.A. Abboudi, and M.O. Deville. Chebyshev 3D Spectral and 2D Pseudospectral Solvers for the Helmholtz Equation. *J. Comput. Phys.*, 55 :115–128, 1984.

- [33] F.H. Harlow and J.E. Welch. Numerical Calculation of Time-Dependent Viscous Incompressible Flow of Fluid with Free Surface. *Phys. Fluids*, 8 :2182–2189, 1965.
- [34] J. Hesteven, P. Dinsen, and J. Lynov. Spectral collocation time-domain modeling of diffractive optical elements. *J. Comput. Phys.*, 155 :287–306, 1999.
- [35] F. J. Higuera. The hydrodynamic stability of an evaporating liquid. *Phys. Fluids*, 30(3) :679–686, 1987.
- [36] K. H. Kang and C. K. Choi. A theoretical analysis of the onset of surface-tension-driven convection in a horizontal liquid layer cooled suddenly from above. *Phys. Fluids*, 9(1) :7–15, 1997.
- [37] G. Kasperski and G. Labrosse. On the numerical treatment of viscous singularity in wall-confined thermo- capillary convection. *Phys. Fluids*, 12(11) :2695–2697, 2000.
- [38] J. Kim and P. Poin. Application of fractional-step methods to incompressible Navier-Stokes equations. *J. Comput. Phys.*, 59 :308–323, 1985.
- [39] E. L. Koschmieder. *Bénard cells and Taylor vortices*. Cambridge University Press, 1993.
- [40] E.L. Koschmieder and S.A. Prahl. Surface-tension-driven Bénard convection in small containers. *J. Fluid Mech.*, 215 :571–583, 1989.
- [41] D. Kosloff and H. Tal-Ezer. A modified Chebyshev pseudospectral method with an $o(N^{-1})$ time step restriction. *J. Comput. Phys.*, 104(2) :457–469, 1993.
- [42] P. Lascaux and R. Théodor. *Analyse numérique matricielle appliquée à l'art de l'ingénieur*. Masson, 1986.
- [43] D. Leriche and G. Labrosse. High-order direct stokes solvers with or without temporal splitting : numerical investigation of their comparative properties. *SIAM J. Sci. Comput.*, 22(4) :1386–1410, 2000.
- [44] R. Lynch, J. Rich, and D. Thomas. Direct Solution of Partial Difference Equations by Tensor Product Methods. *Numerical Mathematics*, 6(1) :185–199, 1964.
- [45] H. Machrafi, A. Rednikov, P. Colinet, and P.C. Dauby. Bénard instabilities in a binary-liquid layer evaporating into an iner gas. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2010.
- [46] H. Mancini and D. Maza. Pattern formation without heating in an evaporative convection experiment. *Europhys. Lett*, 66(6) :812–818, 2004.
- [47] J. L. Mead and R. A. Renaut. Accuracy, resolution, and stability propertires of a modified Chebyshev method. *SIAM J. Sci. Comput.*, 24 :143–160, 5 2002.
- [48] M. Médale and P. Cerisier. Numerical simulation of Bénard-Marangoni convection in small aspect ratio containers. *Numerical Heat Transfert*, 42 :55–72, 2002.
- [49] D. Merkt and M. Bestehorn. Bénard-Marangoni convection in a strongly evaporating fluid. *Physica D*, 185 :196–208, 2003.
- [50] C. Moussy, G. Lebon, and J. Margerit. Influence of evaporation on Bénard-Marangoni instability in a liquid-gas bilayer with a deformable interface. *The European Physical Journal B*, 40 :327–335, 2004.
- [51] S. Nguyen and C. Delcarte. A spectral collocation method to solve Helmholtz problems with boundary conditions involving mixed tangential and normal derivatives. *J. Comput. Phys.*, 200 :34–49, October 2004.

- [52] D. Nield. Surface tension and buoyancy effects in cellular convection. *J. Fluid Mech.*, 19 :341–352, 1964.
- [53] O. Ozen and R. Narayanan. The physics of evaporative and convective instabilities in bylayer systems. *Phys. Fluids*, 16 :4644–4652, 2004.
- [54] R. Pasquetti, P. Cerisier, and C. Le Nillot. Laboratory and numerical investigation on Bénard-Marangoni convection in circular vessels. *Phys. Fluids*, 14(1) :277–288, 1 2002.
- [55] S.V. Patankar. *Numerical heat transfer and fluid flow*. Series in Computation Methods in Mechanics and Thermal Sciences, Minkowycz and Sparrow Eds., 1980.
- [56] D. W. Peaceman and H. H. Rachford Jr. The numerical solution of parabolic and elliptic differential equations. *J Soc Ind Appl Math*, 3 :28–41, 1959.
- [57] J. Pearson. On convection cells induced by surface tension. *J. Fluid Mech.*, 4 :489–500, 1958.
- [58] C. Pérez-García, B. Echebarria, and M. Bestehorn. Thermal properties in surface-tension-driven convection. *Physical review E*, 57(1) :475–481, 1 1998.
- [59] R. Peyret. *Spectral Methods for Incompressible Viscous Flow*. Applied Mathematical Sciences. Springer-Verlag, New York, 2002.
- [60] Lord Rayleigh. On convective currents in a horizontal layer of fluid when the higher temperature is on the under side. *Phil. Mag.*, 32 :529–, 1916.
- [61] S.C. Reddy, A.A.C Weideman, and G.F. Norris. On a Modified Chebyshev Pseudospectral Method. *J. Comput. Phys.*, 104 :457–469, 1993.
- [62] V. C. Regnier, P. C. Dauby, and G. Lebon. Linear and nonlinear Rayleigh-Bénard-Marangoni instability with surface deformations. *Phys. Fluids*, 12 :2787–2799, 2000.
- [63] J. Shen. Hopf bifurcation of the unsteady regularized driven cavity flow. *J. Comput. Phys.*, 95 :228–245, 1 1991.
- [64] O. Touazi, E. Chenier, F. Doumenc, and B. Guerrier. Simulation of Transient Rayleigh-Bénard-Marangoni convection induced by evaporation. *Int. J. Heat and Mass Transfert*, 2009.
- [65] G. Toussaint, H. Bodiguel, F. Doumenc, B. Guerrier, and C. Allain. Experimental characterisation of buoyancy- and surface tension-driven convection during the drying of a polymer solution. *Int. J. Heat and Mass Transfert*, 51 :4228–4237, 2008.
- [66] C. Wagner, R. Friedrich, and R. Narayanan. Comments on the numerical investigation of Rayleigh and Marangoni convection in a vertical circular cylinder. *Phys. Fluids*, 6(4) :1425–1433, 1994.
- [67] J.V. Wehausen and E.V. Laitone. Surface waves. In *Handbuch der Physik*, pages 446–778. Springer, 1960.