HAL
open science

Modélisation et simulation numérique des transferts de masse et de chaleur induits par évaporation

Louis-Henri Baudey-Laubier

To cite this version:

Louis-Henri Baudey-Laubier. Modélisation et simulation numérique des transferts de masse et de chaleur induits par évaporation. Modélisation et simulation. Université Paris-Est, 2016. Français. NNT : 2016PESC1086 . tel-01535046

HAL Id: tel-01535046

https://theses.hal.science/tel-01535046v1

Submitted on 8 Jun 2017

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.

UNIVERSITÉ PARIS-EST

École doctorale 531 : Sciences, Ingénierie & Environnement

Thèse

présentée en première version en vue d'obtenir le grade de Docteur, spécialité
« Énergétique - Génie des procédés »

par

Louis-Henri BAUDEY-LAUBIER

Modélisation et simulation numérique des transferts de masse et de chaleur induits par évaporation

Soutenue le 15 Décembre 2016 devant le jury composé de :

M	Alain BERGEON	Professeur des Universités	IMFT - Toulouse	(Examinateur)
M.	Eric CHÉNIER	Maître de Conférences	MSME - Marne-La-Vallée	(Directeur de thèse)
Mme	Béatrice GUERRIER	Directrice de Recherche	FAST - Orsay	(Rapporteur)
M	Guy LAURIAT	Professeur des Universités	MSME - Marne-La-Vallée	(Examinateur)
M	Benoît TROUETTE	Maître de Conférences	MSME - Marne-La-Vallée	(Examinateur)
M.	Shihe XIN	Professeur des Universités	CETHIL - Lyon	(Rapporteur)

Savoir
Et se dire que l'on ne sait pas
Est bien.
Ne pas savoir
Et se dire que l'on sait
Conduit à la difficulté.

Être conscient de la difficulté
Permet de l'éviter

Le sage ne rencontre pas de difficultés
Car il vit dans la conscience des difficultés
Et donc, n'en souffre pas.

Lao Tseu
Tao Te King
(VIe siècle av. J.-C.)

À ma mère
En souvenir de mon père
Et de mon grand-père maternel.

Remerciements

Je tiens à saluer ici les personnes qui, de près ou de loin, ont contribué à la concrétisation de ce travail de thèse de doctorat. Tout d'abord, mes remerciements s'adressent à Mr Eric Chénier, directeur de thèse qui m'a proposé ce sujet, pour la confiance qu'il m'a accordée en acceptant d'encadrer ce travail doctoral, pour ses multiples conseils et pour toutes les heures qu'il a consacrées à diriger cette recherche. Au travers de nos discussions, il m'a apporté une compréhension plus approfondie des divers aspects du sujet. Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à M. Alain Bergeon, qui m'a fait l'honneur de présider le jury de thèse de doctorat. Je suis très reconnaissant à Mme Béatrice Guerrier et Shihe Xin d'avoir accepté le rôle de rapporteur. Je souhaite également remercier Monsieur Salah Naili, directeur du laboratoire de Modélisation et Simulation Multi-échelle ainsi que le personnel de l'équipe « Transfert de Chaleur et de Matière », à savoir Messieurs Lauriat, Nicolas et Trouette et Madame Ould-Rouiss pour leur accueil chaleureux. Ma gratitude s'adresse aussi à ceux qui ont été tour à tour mes collègues de bureau, Messieurs Van Huyen Vu, Paulin Gnambode Sourou, Meng Liao et Romain Berraud-Pache qui m'ont aidé à répondre à un certain nombre de questions pratiques, techniques, ou scientifiques, que je me suis posées. Je souhaite remercier l'Institut du Développement des Ressources en Informatique Scientifique pour leur formation en calcul parallèle et la mise à disposition de leur calculateur Ada et de leur serveur d'archives Ergon qui nous ont permis d'obtenir dans le cadre de ce travail des résultats tridimensionnels. Ce travail rentre dans le cadre du projet IDRIS 100527. Je dois remercier le Centre de Ressources Informatiques de l'Université Paris-Est Marne La Vallée et plus particulièrement Messieurs Guillaume Sauvenay et Romain Houdry pour la maintenance des ordinateurs et pour les maintes réparations de l'ordinateur portable (car il y en a eu). Je remercie le service de prêt entre bibliothèque de l'Université Paris-Est Marne La Vallée pour l'obtention de certains ouvrages qui a permis à l'élaboration du travail bibliographique. Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à ma famille et mes amis pour leur soutien. Je clos enfin ces remerciements en dédiant cette thèse de doctorat à ma mère, qui m'a soutenu tout au long de ces années de travail.

Champs sur Marne, le 3 mars 2017.

Table des matières

Table des matières vi

Liste des figures ix

Liste des tableaux xv

xv

Introduction 1

1 Étude bibliographique 3
1.1 Définition et application du séchage . . . 5
1.2 La déformation de l'interface . . . 8
1.3 La thermodiffusion . . . 9
1.4 Étude des instabilités . . . 11

2 Équations et méthodes numériques 13
2.1 Evaporation d'une solution liquide . . . 15
2.1.1 Équations générales de conservation d'une solution binaire . . . 15
2.1.2 Équations de bilan à l'interface liquide/gaz . . . 16
2.1.2.1 Équilibre thermodynamique . . . 16
2.1.2.2 Continuité des flux de matière . . . 17
2.1.2.3 Conditions sur les flux de quantité de mouvement . . . 18
2.1.2.4 Conditions thermiques . . . 18
2.2 Modèles physiques simplifiés . . . 19
2.2.1 Hypothèses principales . . . 19
2.2.1.1 Grandeurs physiques . . . 19
2.2.1.2 Modélisation de la phase gazeuse et de l'interface . . . 21
2.2.2 Modèle couplé thermique/massique . . . 24
2.2.3 Modèle thermique . . . 25
2.2.4 Modèle massique . . . 27
2.3 Formalisme adimensionnel . . . 27
2.3.1 Modèle couplé thermique/massique . . . 28
2.3.2 Modèle thermique . . . 29
2.3.3 Modèle massique . . . 30
2.4 Méthodes numériques et validation du code de calcul . . . 31
2.4.1 Schéma de discrétisation et algorithme de résolution . . . 31
2.4.1.1 Méthode Marker And Cell (MAC) . . . 31
2.4.1.2 Méthode Arbitraire Lagrangienne Eulérienne (ALE) . . . 32
2.4.2 Validation . . . 33
2.4.2.1 Cavité entraînée . . . 33

2.4.2.2 Cavité différentiellement chauffée 34

3 Naissance de la convection dans un modèle thermique d'évaporation 35
3.1 Description qualitative des écoulements 39
3.2 Seuil de transition convectif/diffusif : définition 40
3.3 Influence des paramètres numériques sur les seuils 42
3.3.1 Le pas de temps 43
3.3.2 Étude du maillage 44
3.4 Influence de l'allongement sur les seuils convectifs/diffusifs 45
3.5 Développement en espace et en temps des cellules convectives 2D 47
3.5.1 Diagrammes espace-temps 47
3.5.2 Vitesse de propagation des cellules convectives 48
3.5.2.1 Dans l'espace des paramètres physiques (épaisseur, viscosité) 48
3.5.2.2 Dans l'espace des paramètres adimensionnels (Rayleigh, Marangoni) . 50
3.5.3 Développement des instabilités au cœur de la solution : effets de la viscosité et de l'allongement 51
3.5.4 Évolution du nombre de cellules de convection 52
3.5.5 Dépendance des seuils 2D vis-à-vis du coefficient d'échange thermique convectif latéral 55
3.5.6 Autre mode de déstabilisation : perturbations initiales aléatoires 57
3.5.6.1 Comparaison des seuils : échanges thermiques convectifs contre perturbations initiales aléatoires 57
3.5.6.2 Évolution du nombre de cellules de convection pour les simulations 2D 59
3.6 Développement des cellules convectives à la surface libre pour les simulations 3D 60
3.6.1 Identification des cellules à la surface libre 60
3.6.2 Échanges thermiques convectifs aux parois latérales 63
3.6.3 Parois adiabatiques et perturbations aléatoires initiales 65
3.7 Comparaison des viscosités de transition diffusion/convection avec des travaux antérieurs 67

4 Naissance de la convection dans un modèle massique d'évaporation 71
4.1 Illustration de l'écoulement massique 73
4.2 Influence des paramètres numériques sur les seuils 75
4.3 Étude des seuils de transition convectif/diffusif 77
4.4 Genèse en espace et en temps des cellules convectives 80
4.4.1 Évolution de l'écoulement convectif pour des écoulements 2D : Diagrammes espace-temps 80
4.4.2 Développement des cellules convectives à la surface libre pour un écoulement tridimensionnel, $\varphi_p = 0,01$ et $e_{init} = 11,5\,\mu m$ 82

5 Naissance de la convection dans un modèle couplé thermique/massique d'évaporation 85
5.1 Illustration des écoulements lors du couplage thermique/massique 87
5.2 Influence des paramètres numériques 90
5.2.1 Choix du pas de temps 90
5.2.2 Maillage 91
5.3 Identification des seuils de transition thermiques et massiques 92
5.3.1 Étude de la déstabilisation de la solution diffusive 92
5.3.2 Délimitation des régimes convectifs thermique et massique 93
5.3.3 Seuils de transition du modèle couplé : régimes thermique et massique 94
5.4 Analyse en espace et en temps des écoulements 2D 96

5.4.1 Régime thermique 96
5.4.2 Régime massique 97
5.4.3 Régime couplé thermique et massique 98
5.5 Cellules convectives 3D à la surface libre : régime couplé thermique et massique 99
5.5.1 Convection thermique 100
5.5.2 Convection massique 102

Conclusion générale **107**

A Annexes **113**
A.1 Condition de saut de la contrainte à l'interface 115

Bibliographie **117**

Liste des symboles **121**

Liste des figures

1.1 Exemple de séchage : Les marais salants. 5
1.2 Cellule solaire souple [60] 5
1.3 Henri Bénard (1874-1939) [39] 6
1.4 Présentation du protocole d'étude de Toussaint et al. [53] dans le cadre de l'étude de séchage d'une solution PIB/Toluène. 7
1.5 Schéma représentant les régimes de dépendance viscosité-fraction volumique de solvant. 8
1.6 Représentation de la déformation de l'interface [4] 9
1.7 Schéma de l'effet Soret [11] 10

2.1 Schéma de l'interface liquide-gaz 16
2.2 Schéma représentant le récipient contenant la solution de Polyisobutylène/Toluène à l'échelle dimensionnelle. 25
2.3 Schéma représentant le récipient contenant la solution de Polyisobutylène/Toluène à l'échelle adimensionnelle. 28
2.4 Schéma maillage Marker and Cell 32

3.1 Schéma du dispositif pour une simulation thermique 3D 36
3.2 Fluctuations du champ de température autour de la température moyenne $\theta_m(t)$ (Champs colorés), et lignes de courant ψ. Les échelles de la température et des lignes de courant sont comprises respectivement dans l'intervalle $[-0,06; 0,04]$ et $[-2; 2]$. . . 39
3.3 Iso-surface de la température fluctuante $\theta(x, y, z, t) - \theta_m(t) = 0,01$ et iso-lignes de la composante verticale de la vitesse sur l'intervalle $[-2; 2]$ ($e_{init} = 20\,mm$, $\mu_{init} = 1390\,mPa.s$, $A = 20$). 40
3.4 Présentation du critère de détermination des seuils diffusif-convectif ($e_{init} = 1\,mm$, $A = 20$, $Bi_{lat} = 0,07$). 41
3.5 Évolution de la différence de température entre le fond du récipient et l'interface et du nombre de Péclet pour $e_{init} = 8\,mm$ et $\mu_{init} = 70\,mPa.s$. La courbe bleue est obtenue en supprimant les termes de transport des équations.. 42
3.6 Influence du pas de temps Δt sur les viscosités seuils de convection/diffusion et les temps de déclenchement. 43
3.7 Influence du nombre de mailles verticales N_y sur les viscosités seuils de convection/diffusion et les temps de déclenchement. 44
3.8 Viscosités seuils et temps de déclenchement de la convection pour différents allongements A. La limite inférieure (resp. supérieure) de chacune des barres indique une solution convective (resp. diffusive), et le symbole est une valeur extrapolée de la viscosité $\mu_{cv/d}$ et du temps $t_{cv/d}$. 46
3.9 Diagrammes espace-temps de vitesse à la surface libre pour $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$ 47
3.10 Évolution des vitesses en fonction des différentes amplitudes pour les différents allongements. 49

3.11 Évolution temporelle du maximum de l'intensité de la vitesse à la surface libre de la cellules située au centre du film fluide du diagramme espace-temps 3.9a ($e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$ et $A = 20$). 49
3.12 Variation de la vitesse de propagation des cellules convectives en fonction des nombres de Rayleigh et de Marangoni ($A = 20$, $Bi_{lat} = 0,07$). 50
3.13 Schéma représentant l'influence de la viscosité pour un allongement donné. 52
3.14 Schéma représentant l'influence de l'allongement pour une viscosité donnée. 52
3.15 Diagramme espace-temps et lignes de courant ($e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$, $A = 20$). 53
3.16 Étude des caractéristiques des cellules convectives. Les longueurs d'onde moyenne sont données pour des instants discrets séparés par un pas temporel $\Delta\tau$. 54
3.17 Viscosités seuils $\mu_{cv/d}$ et temps de déclenchement de la convection $t_{cv/d}$ pour différents allongements A et coefficients d'échange thermique convectif h_{lat}, $[h_{lat}] = W/(m^2.K)$. 55
3.18 Influence du coefficient d'échange latéral h_{lat} sur les diagrammes espace-temps ($e_{init} = 8\,mm$, $A = 20$). 56
3.19 Viscosités seuils $\mu_{cv/d}$ et temps de déclenchement $t_{cv/d}$ de la convection pour différents allongements A et modes de déstabilisation, ($h_{lat} = 0,07$, $r = 0$) et ($h_{lat} = 0$, $r = 10^{-3}$). La limite inférieure (resp. supérieure) de chacune des barres indique une solution convective (resp. diffusive), et le symbole est une valeur extrapolée de la viscosité $\mu_{cv/d}$ et du temps $t_{cv/d}$. 58
3.20 Diagrammes espace-temps de vitesse à la surface libre ($A = 20$, $e_{init} = 1\,mm$ et $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$) 58
3.21 Évolution du nombre des cellules convectives pour (a-c) une perturbation aléatoire ($r = 10^{-3}$, $h = 0$) et (d-f) un échange thermique convectif aux parois ($r = 0$, $h = 10\,W/(m^2.K)$). 59
3.22 Évolution de la taille moyenne des cellules convectives pour (a-c) une perturbation aléatoire ($r = 10^{-3}$, $h = 0$) et (d-f) un échange thermique convectif aux parois ($r = 0$, $h = 10\,W/(m^2.K)$). Les tailles sont relevées à des instants discrets, de fréquence $1/\Delta\tau$. 60
3.23 Reconstruction des cellules par un pavage de l'espace avec un algorithme de Voronoï [34]. 61
3.24 Superposition de la fluctuation de température autour de θ_m à la surface libre, vecteurs vitesse et reconstruction des structures convectives. Les vecteurs vitesses ont une taille indépendante de leur intensité. Échelles de température : a $[-0,02;+0,02]$, b $[-0,005;+0,005]$. 62
3.25 Champ des fluctuations de température autour de $\theta_m = -0,557$ ($e_{init} = 8\,mm$, $\mu_{init} = 146\,mPa.s$, $h = 10\,W/(m^2.K)$, $A = 20$). Exemple de construction de rouleaux de convection. L'agrandissement présenté à droite montre la fusion de 2 cellules adjacentes séparées par une arête dessinée par un trait continu. Les vecteurs noirs symbolisent les sens des écoulements principaux. 63
3.26 Reconstruction des cellules convectives superposées au champ de température à la surface libre. Les échelles de température sont comprises dans l'intervalle $[-0,02;+0,02]$ ($e_{init} = 1mm$, $\mu_{init} = 4,32\,mPa.s$, $h = 10\,W/(m^2.K)$, $A = 40$) 64
3.27 Évolution temporelle du nombre de cellules et rouleaux de convection (axe gauche), ainsi que la longueur d'onde moyenne des cellules (axe droit), pour $e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 4,32\,mPa.s$, $h = 10\,W/(m^2.K)$ et $A = 40$. Les barres d'erreur représentent 2 fois l'écart type à la moyenne. 65
3.28 Reconstruction des cellules convectives superposées aux fluctuations du champ de température à la surface libre. Les échelles de température sont comprises dans l'intervalle $[-0,005;+0,005]$ ($e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 5,25\,mPa.s$, $h = 0$, $r = 10^{-3}$, $A = 40$ 66

3.29 Évolution temporelle du nombre de cellules (axe gauche) et de la longueur d'onde moyenne des cellules (axe droit), pour $e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 5,25\,mPa.s$, $h = 0$, $r = 10^{-3}$ et $A = 40$. Les barres d'erreur représentent 2 fois l'écart type à la moyenne. 66
3.30 Comparaisons des viscosités de transition obtenus dans nos travaux (Tab. 3.6) avec celles de la littérature, Trouette et al. [57], Doumenc et al. [18], et Touazi et al. [51] . . . 69
3.31 Comparaisons des seuils de transition convectif-diffusif obtenus dans nos travaux (Tab. 3.6) avec ceux de la littérature. La courbe **(a)** représente la simulation bidimensionnelle de Touazi et al. [51]. Les résultats issus de l'analyse de stabilité linéaire non-normale de Doumenc et al. [18], pour un taux d'amplification $G_V = 1$, sont indiqués par **(b)**. Les seuils tridimensionnels de Trouette et al. [57] obtenus pour une solution contenue dans un récipient cylindrique sont indiqués par la lettre **(c)**. Les points **(d)** et **(e)** illustrent les seuils convectif et diffusif obtenus expérimentalement par Toussaint et al. [53]. Les barres **(f)**, **(g)**, **(h)** et **(i)** montrent les valeurs reportées dans le tableau 3.6, et représentent le cas des simulations bidimensionnelles avec échange convectif aux parois latérales avec un coefficient d'échange convectif $h_{lat} = 10\ W.m^{-2}.K^{-1}$, les simulations bidimensionnelles obtenues avec une perturbation aléatoire d'amplitude $r = 10^{-3}$, les seuils tridimensionnels issus de l'échange convectif aux parois latérales pour le même coefficient que dans le cas des simulations bidimensionnels, les résultats issus d'une perturbation aléatoire d'amplitude identique à celles des simulations bidimensionnelles. 69

4.1 Schéma du dispositif dans le cas d'une simulation purement massique. 72
4.2 Fluctuations du champ de concentration autour de la fraction volumique moyenne $\varphi_{s,m}(t)$ et lignes de courant ψ pour une solution d'épaisseur initiale $e_{init} = 11,5\,\mu m$ et une fraction volumique de polymère $\varphi_p = 0,01$. Les échelles de fraction volumique de solvant et les lignes de courant sont respectivement comprises dans les intervalles $\left[-1,7 \times 10^{-4}; 8,0 \times 10^{-5}\right]$ et $[-0,4; 0,4]$. 73
4.3 Iso-surface de la fraction volumique de solvant moyenne $\varphi_s(x,y,z,t) = \varphi_{s,m}(t)$ et les isolignes de la composante verticale de vitesse $v_y \in [-1,2; 0,6]$ ($e_{init} = 1,15 \times 10^{-2}\,mm$, $\varphi_p = 0,01$, $A = 10$) 74
4.4 Étude des seuils et des temps de déclenchement pour les différents pas de temps et maillages 76
4.5 Détermination des épaisseurs initiales critiques et des temps d'apparition de la convection pour des simulations 2D et 3D pour un allongement $A = 10$ et des perturbations aléatoires comprises entre $\pm 0,5 \times 10^{-3}$. Les points bleus (resp. roses) désignent les seuils interpolés bidimensionnels (resp. tridimensionnels) et la ligne rouge indique les résultats des seuils obtenus par Trouette et al. [58] pour un modèle bidimensionnel. . . 78
4.6 Diagramme espace-temps des vitesses longitudinales à la surface libre pour un allongement $A = 10$ et une amplitude maximale des perturbations aléatoires de $r = 10^{-3}$. Les épaisseurs sont choisies très proches des valeurs seuils. 80
4.7 Évolutions du nombre de cellules convectives N_{cell} et de leur taille moyenne λ_m pour un allongement $A = 10$ et une amplitude maximale des perturbations aléatoires de $r = 10^{-3}$. Les incertitudes mentionnées sur les tailles des cellules représentent la dispersion des valeurs (écart type). 81
4.8 Reconstruction des cellules convectives à la surface libre, superposée à la fluctuation de fraction volumique de solvant autour de $\varphi_{s,m}$ ($[-3 \times 10^{-5}; 3 \times 10^{-5}]$), pour une épaisseur $e = 11,5\,\mu m$ et un allongement $A = 10$. Les symboles • indiquent les cellules convectives. 82
4.9 Évolution du nombre de cellules convectives reconstruites au niveau de l'interface libre pour une épaisseur $e_{init} = 11,5\,\mu m$ et un allongement $A = 10$ 83

5.1 Schéma du dispositif pour une simulation couplée thermique/massique. Les échelles de vitesse et de temps sont issues du modèle massique (D/e_{init} et e_{init}^2/D). 86
5.2 Evolution des fluctuations du champ de température autour de la valeur moyenne $\theta_m(t)$ (a-d), échelle de couleur $[-5\times10^{-3};2\times10^{-3}]$; fluctuations du champ de fraction volumique de solvant autour de la valeur moyenne $\varphi_{s,m}(t)$, échelle de couleur $[-2,2\times10^{-3};0]$ (e-h). Sur les deux champs sont superposées les lignes de courant définies dans l'intervalle $[-500;500]$. La viscosité moyenne μ_m est déterminée pour la fraction de solvant $\varphi_{s,m}$: $\mu_m=\mu(\varphi_{s,m})$. 87
5.3 Evolution des fluctuations du champ de température autour de la valeur moyenne $\theta_m(t)$ (a-d), échelle de couleur $[-3\times10^{-3};2\times10^{-3}]$; fluctuations du champ de fraction volumique de solvant autour de la valeur moyenne $\varphi_{s,m}(t)$ (e-h), échelle de couleur $[-1,5\times10^{-2};5\times10^{-3}]$. Sur les deux champs sont superposées les lignes de courant définies dans l'intervalle $[-2;2]$. La viscosité moyenne μ_m est déterminée pour la fraction de solvant $\varphi_{s,m}$: $\mu_m=\mu(\varphi_{s,m})$. 88
5.4 Iso-surface de la température moyenne $\theta(x,y,z,t)=\theta_m(t)$ et iso-lignes de la composante verticale de la vitesse $v_y\in[-400;400]$. La viscosité moyenne μ_m est déterminée pour la fraction de solvant $\varphi_{s,m}$: $\mu_m=\mu(\varphi_{s,m})$. Paramètres : $e_{init}=84\,\mu m$, $(Pe_{int}=0,25)$, $\varphi_p=0,1$, $A=20$, $h_{lat}=0,001\,W/(m^2.K)$ 89
5.5 Iso-surface de la fraction volumique de solvant moyenne $\varphi_s(x,y,z,t)=\varphi_{s,m}(t)$ et iso-lignes de la composante verticale de vitesse $v_y\in[-6,5;6,5]$. La viscosité moyenne μ_m est déterminée pour la fraction de solvant $\varphi_{s,m}$: $\mu_m=\mu(\varphi_{s,m})$. Paramètres : $e_{init}=84\,\mu m$, $(Pe_{int}=0,25)$, $\varphi_p=0,1$, $A=20$, $h_{lat}=0,001\,W/(m^2.K)$) 89
5.6 Comparaison de l'évolution du nombre de Péclet massique $Pe_{sol,c}(t)$ pour des simulations à pas de temps constant (référence), $\Delta t=10^{-6}$, et variable selon la relation (5.1) (axe gauche) et pas de temps instantané Δt (axe droit). Paramètres : $e_{init}=100\,\mu m$, $h_{lat}=0,001\,W/(m^2.K)$, $\varphi_p=10^{-4}$ et $A=20$. 91
5.7 Comparaison de l'évolution du nombre de Péclet massique $Pe_{sol,c}(t)$ entre le maillage de référence ($n_y=50$) et un pas de temps constant $\Delta t=10^{-6}$, et trois maillages ($ny=30$, 50 et 80) avec des pas de temps variables selon la loi (5.1) avec $\Delta t_{max}=10^{-3}$. Paramètres : $e_{init}=100\,\mu m$, $h_{lat}=0,001\,W/(m^2.K)$, $\varphi_p=10^{-4}$ et $A=20$. 92
5.8 Évolutions des différences de température et de fraction volumique de solvant entre le fond du récipient et la surface libre, au milieu du film liquide, $X=A/2$. Sur la figure b sont ajoutées les évolutions dans le cas purement diffusif (courbes avec des traits fins). Paramètres : $e_{init}=100\,\mu m$, $h_{lat}=0,001\,W/(m^2.K)$ et $A=20$. 93
5.9 Délimitation des régimes thermique et massique. 94
5.10 Épaisseurs et temps critiques correspondant à la transition entre une solution diffusive et un écoulement convectif pour les modèles thermique et massique. Paramètres $h_{lat}=0,001\,W/(m^2.K)$ et $A=20$. 95
5.11 Développement des cellules convectives au niveau de la surface libre. Paramètres : $e_{init}=100\,\mu m$, $\varphi_p=10^{-5}$, $A=20$ et $h_{lat}=0,001\,W/(m^2.K)$. 97
5.12 Lignes de courant dans l'intervalle $[-500;500]$, pour une épaisseur de $100\,\mu m$, une fraction volumique de polymère de 10^{-5}. 97
5.13 Développement des cellules convectives au niveau de la surface libre. Paramètres : $e_{init}=30\,\mu m$, $\varphi_p=0,05$, $A=20$ et $h_{lat}=0,001\,W/(m^2.K)$. 98
5.14 Coupes verticales représentant les lignes de courant pour une épaisseur de $30\,\mu m$ ($Pe_{int}=9\times10^{-2}$), une fraction volumique de polymère de $0,05$. Les lignes de courant sont comprises dans l'intervalle $[-2;2]$. 98
5.15 Développement des cellules convectives au niveau de la surface libre. Paramètres : $e_{init}=100\,\mu m$, $\varphi_p=10^{-1}$, $A=20$ et $h_{lat}=0,001\,W/(m^2.K)$. 99

5.16 Évolution du nombre de Péclet solutal $Pe_{sol,c}(t)$, et des écarts de température et de fraction solutale entre le fond et la surface libre, au milieu du film liquide ($e_{init} = 84\,\mu m$, $\varphi_p = 0,1$). 100
5.17 Fluctuations de la température autour de $\theta_m(t)$ à la surface libre et reconstruction des cellules convectives thermiques par un algorithme de Voronoï. Échelle de température $[-2,5 \times 10^{-4}; +2,5 \times 10^{-4}]$ ($e_{init} = 84\,\mu m$, $\varphi_p = 0,1$). 101
5.18 Évolution de la vitesse verticale pour 4 points de coordonnées $(A/2 \pm 1; 0,5; A/2 \pm 1)$ ($e_{init} = 84\,\mu m$, $\varphi_p = 0,1$). 102
5.19 Décompte du nombre de cellules convectives dans le régime thermique (axe gauche) et taille moyenne de ces cellules (axe droit). 102
5.20 Fluctuations de la fraction volumique de solvant autour de $\varphi_{s,m}(t)$ à la surface libre et reconstruction des cellules convectives thermiques par un algorithme de Voronoï. Échelle massique $[-3 \times 10^{-3}; +1,5 \times 10^{-3}]$ ($e_{init} = 84\,\mu m$, $\varphi_p = 0,1$). 103
5.21 Fluctuations de la fraction volumique de solvant autour de $\varphi_{s,m}(t)$ à la surface libre et reconstruction des cellules convectives massiques par un algorithme de Voronoï. Échelle massique $[-5 \times 10^{-3}; +5 \times 10^{-3}]$ ($e_{init} = 84\,\mu m$, $\varphi_p = 0,1$. 105
5.22 Nombre de cellules convectives d'origine massique et leurs longueurs d'ondes pour $e_{init} = 84\,\mu m$, $\varphi_p = 10^{-1}$, $A = 20$ 106

Liste des tableaux

2.1 Propriétés du Polyisobutylène, du toluène et du mélange ($T = 298\ K$) [51, 53, 58] . . . 20
2.2 Exemples du poids des différents termes de l'équation (2.20), $\Phi_{s,0} = 0,337\, g/m^2.s$ . . . 23
2.3 Liste des paramètres adimensionnels . . . 28
2.4 Résultats de la simulation 2D pour une cavité entraînée avec $Re = 1000$ . . . 33
2.5 Résultats de la simulation 3D pour une cavité entraînée avec $Re = 1000$ . . . 34
2.6 Résultats de la simulation 3D pour une cavité entraînée avec $Ra = 10^6$ . . . 34

3.1 Relation entre les paramètres physiques et les nombres adimensionnels [57] . . . 37
3.2 Pas de temps et maillage des simulations numériques. . . . 45
3.3 Coefficients de l'équation d'approximation (3.3) . . . 50
3.4 Vitesses de propagation des cellules convectives issues des simulations (V_{moy}) et écart relatif $\mathrm{E}_{\mathrm{V}_{\mathrm{moy}}} = |V_{moy}^{anal}/V_{moy} - 1|$ ($A = 20$, $Bi_{lat} = 0,07$). La solution numérique pour $Ra = 500$ et $Ma = 500$ est purement diffusive. . . . 51
3.5 Paramètres adimensionnels utilisés pour l'étude des vitesses de propagation des cellules convectives ($A = 20$, $Bi_{lat} = 0,07$). . . . 51
3.6 Synthèse des seuils des simulations bidimensionnelles et tridimensionnelles, pour un échange thermique convection aux parois latérales ou des frontières adiabatiques et une perturbation initiale thermique aléatoire. . . . 67

4.1 Pas de temps Δt et nombre de mailles verticales N_y utilisés pour les simulations 2D ($N_x = A \times N_y$) et 3D ($N_x = N_z = A \times N_y$) pour 4 fractions volumiques de polymères $\varphi_p = 10^{-1}$, 10^{-2}, 10^{-3} et 10^{-4}. . . . 77
4.2 Synthèse des épaisseurs initiales critiques pour la transition convectif/diffusif et temps d'apparition de la convection pour un allongement $A = 10$ et une amplitude maximale de perturbation aléatoire $r = 10^{-3}$. . . . 78

5.1 Synthèse des épaisseurs initiales et temps critiques pour la transition entre un régime diffusif thermique et un écoulement thermo-convectif pour un allongement $A = 20$. . . 95
5.2 Synthèse des épaisseurs initiales et temps critiques pour la transition entre un régime diffusif massique et un écoulement soluto-convectif pour un allongement $A = 20$. . . . 96

Introduction

Le séchage est une méthode qui permet d'éliminer d'une solution, en totalité ou en partie, le solvant qui s'y trouve incorporé. Ce procédé relativement simple d'utilisation a des applications multiples. Nous le retrouvons dans le domaine industriel avec les procédés de dépôts sur les matériaux. Cette opération permet d'améliorer l'esthétique ou de changer les propriétés de surface, par exemple en la rendant non mouillante ou en modifiant ses propriétés radiatives.
Le séchage est un processus lent et complexe qui repose sur l'évaporation du solvant. Cette évaporation engendre au niveau de l'interface, entre le mélange et le gaz environnant,

— **un transfert d'énergie** sensible qui est prélevé au niveau de l'interface de la solution et transféré au solvant sous forme d'énergie latente pour le faire passer d'une phase liquide à une phase gazeuse ;
— **un transfert massique** créé par la disparition du solvant de la phase liquide.

Ces différents transferts engendrent une diminution de la température et de la concentration en solvant à la surface libre, qui diffuse au sein de la solution liquide et peut, sous certaines conditions, induire des instabilités susceptibles de générer des écoulements convectifs. Cette déstabilisation est alors liée, soit à des variations de la densité de la solution (instabilité de type Rayleigh-Bénard [7]), soit à des fluctuations de la tension de surface séparant le fluide de son environnement (instabilités de type Bénard-Marangoni [40]). Dans chacune de ces deux situations, les inhomogénéités peuvent être d'origine thermique ou massique Au cours du séchage, l'évaporation du solvant provoque la diminution de l'épaisseur du film liquide et le changement des propriétés de la solution, comme par exemple une forte augmentation de la viscosité qui produira, à terme, la future couche déposée sur le matériau.

Des expérimentations de séchage ont été effectuées dans différents laboratoires de recherche [4, 38, 43], et en particulier au laboratoire « Fluides, Automatique et Systèmes Thermiques » pour une solution de Polyisobutylène-Toluène [53]. En s'appuyant sur ces derniers travaux, des modèles physiques simplifiés, puis des modèles numériques ont été développés sous l'hypothèse que les temps caractéristiques des instabilités thermiques et massiques pouvaient être découplées [51, 56]. De plus, la nature intrinsèquement transitoire de l'évaporation a conduit ces auteurs à introduire dans leurs simulations numériques des perturbations afin d'engendrer des germes pour la déstabilisation de la solution diffusive transitoire. Ces perturbations ont été toutes imposées à l'instant initial et principalement exprimées à travers un champ spatial de valeurs aléatoires.

L'objectif de cette thèse a été d'étudier l'évaporation d'un mélange de Polyisobutylène/Toluène, et en particulier de rechercher les paramètres physiques (épaisseur initiale, viscosité initiale de solvant ou fraction volumique de solvant) caractérisant la transition entre une solution essentiellement diffusive et un écoulement où la convection est dominante. Les points suivants ont été développés :

— Pour s'affranchir de la nature aléatoire de la perturbation qui nous semblait physiquement discutable dans les travaux antérieurs, nous avons choisi de modéliser une solution fluide contenue dans une coupelle dont les parois latérales sont soumises à un échange thermique convectif avec le gaz ambiant. Cette modélisation permet également d'introduire un germe de déstabilisation, non plus à l'instant initial mais comme condition aux limites.
— Pour étudier les transitions engendrées par les transferts thermiques et massiques, nous avons

utilisé trois modèles valables pour des intervalles de temps distincts : le modèle thermique pour les temps courts, le modèle massique pour les temps longs et le modèle couplé qui recouvre l'ensemble de ces deux périodes temporelles.

— Les travaux ont été menés à l'aide de simulations bidimensionnelles et tridimensionnelles. Les résultats ont été comparés entre eux afin d'étudier la pertinence d'utiliser un modèle simplifié beaucoup moins coûteux en temps de calcul que le modèle complet.

Le mémoire s'organise selon le plan suivant :

☞ Le *premier chapitre* expose une synthèse des travaux bibliographiques.

☞ Le *deuxième chapitre* présente en détails les modèles physiques, à savoir le modèle de couplage thermique/massique, le modèle thermique pur et le modèle massique pur. Nous présenterons ensuite les méthodes numériques et les résultats de validation du code de calcul.

☞ Le *troisième chapitre* présente les résultats obtenus dans le cas du modèle thermique pur.

☞ Le *quatrième chapitre* traite du modèle massique pur.

☞ Le *cinquième chapitre* s'intéresse au modèle couplé thermique/massique.

Ce mémoire se termine par une conclusion qui synthétise les résultats obtenus et dresse quelques perspectives d'études à mener dans le futur.

1 Étude bibliographique

Sommaire

1.1 Définition et application du séchage 5
1.2 La déformation de l'interface 8
1.3 La thermodiffusion 9
1.4 Étude des instabilités 11

1.1 Définition et application du séchage

Le séchage est une pratique ancienne. Dès l'antiquité, le soleil est mis à contribution dans les marais salants, pour faire évaporer l'eau de mer et récolter le sel (Fig. 1.1).

Figure 1.1 – *Exemple de séchage : Les marais salants.*

Ce procédé est employé dans de nombreux domaines et diverses méthodes sont utilisées. Dans l'industrie agroalimentaire, pour conserver les aliments tout en gardant les éléments nutritifs, il est préférable d'éliminer l'eau qu'ils contiennent. Charreau et Cavaillé [13] ont expliqué le séchage par ébullition qui consiste à faire évaporer le liquide contenu dans un aliment par chauffage. L'industrie pharmaceutique et l'industrie chimique utilisent fréquemment le séchage par infra-rouges ou par micro-ondes. Ce procédé peut être obtenu par convection en mettant en contact un gaz en mouvement avec le corps à sécher, dans ce cas, nous parlons de séchage par entraînement. L'évaporation du solvant amène la formation de dépôts sur différents matériaux. C'est un moyen de modifier l'esthétique (modification de couleur, changement d'aspect). On peut transformer les propriétés de surface pour les rendre non mouillante avec par exemple des matériaux super-hydrophobes (revêtement en Téflon). On peut aussi changer les propriétés radiatives (pour enduire les tuiles pour l'optimisation énergétique des bâtiments [54]). Dans le domaine de l'énergie, la recherche s'oriente vers des solutions solvant-polymère qui permettent le développement de nouvelles technologies comme les cellules photovoltaïques organiques où une solution solvant-polymère est utilisée pour protéger les modules (Fig. 1.2). Ces cellules qui devraient réduire le coût du kilowattheure tout en

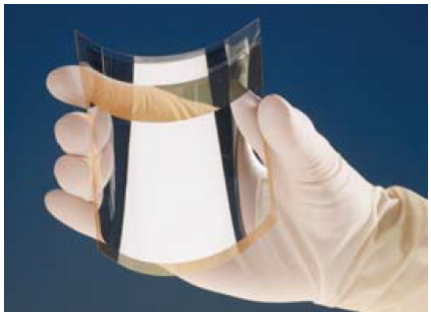


Figure 1.2 – *Cellule solaire souple [60]*

étant biodégradables, n'ont pas les inconvénients des panneaux en silicium. On comprend mieux l'intérêt que présente l'étude du séchage des polymères d'un point de vue industriel.

Le phénomène de séchage, processus endothermique, se traduit par l'évaporation du solvant. Il débute par un refroidissement au niveau de l'interface liquide gaz et des transferts massiques de solvant entre la solution et l'environnement extérieur. Des variations de la température et de la

concentration en solvant diffusent ensuite au sein de la solution liquide. Ils peuvent sous certaines conditions induire, via les effets de la poussée d'Archimède et/ou de tension de surface, des instabilités qui donneront naissance à des écoulements convectifs au sein de la solution.

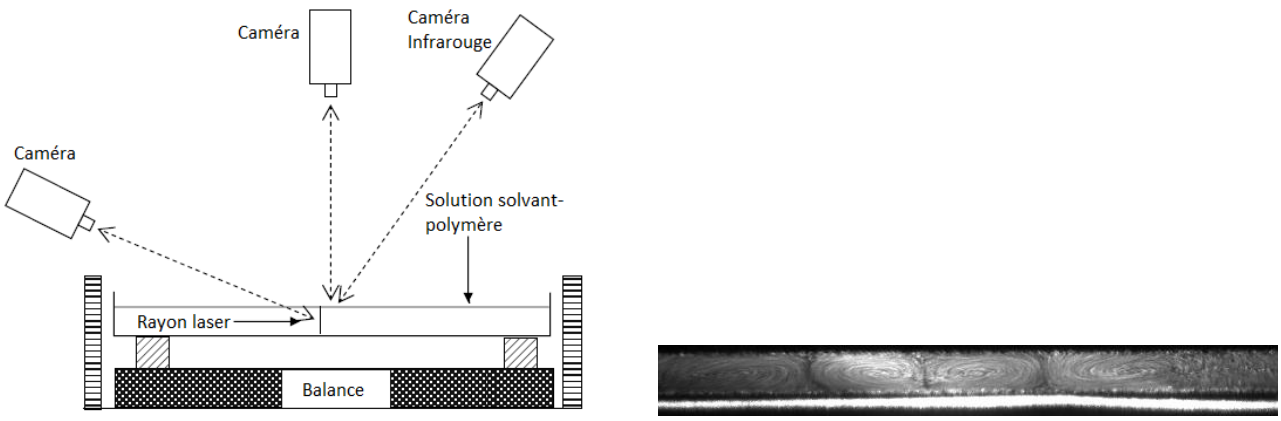
Déjà en 1900, Henri Bénard (Fig. 1.3) publie dans la littérature ses travaux sur l'étude expérimentale des mouvements convectifs d'une couche de liquide horizontale chauffée par le dessous. Il

FIGURE 1.3 – *Henri Bénard (1874-1939) [39]*

publiera sa thèse intitulée *Les tourbillons cellulaires dans une nappe liquide transportant de la chaleur par convection en regime permanent* en 1904. De très nombreux travaux ont été menés pour mieux comprendre et caractériser ces cellules de convection [39]. Parmi les travaux précurseurs de référence, nous pouvons citer l'étude théorique de Pearson [40], qui a étudié les cellules de Bénard-Marangoni (cellules de convection entraînées par les forces capillaires) sur un film de peinture à l'air libre. Blair et Quinn [7] se sont intéressés aux cellules entraînées par la poussée d'Archimède, appelées cellules de Rayleigh-Bénard. L'étude a été faite pour deux types de solutions : solution eau-ammoniaque et eau-alcool. Dans la très grande majorité des travaux menés précédemment, les écoulements fluides tendent soit vers un régime stationnaire ou périodique, soit vers un écoulement plus complexe mais pour lequel il est possible d'identifier un comportement moyen (écoulements chaotiques ou turbulents). On distingue trois types de cellules de convection : les cellules de Rayleigh-Bénard, Bénard-Marangoni et Rayleigh-Bénard-Marangoni.
Les instabilités de Rayleigh-Bénard sont provoquées par des variations de masse volumique et dépendent du nombre de Rayleigh *Ra*. Ce nombre caractérise le rapport entre les effets de la Poussée d'Archimède mettant en mouvement l'écoulement et les effets dissipatifs au sein de la solution, comme la diffusion de quantité de mouvement (représenté par le terme de viscosité) et la diffusion d'enthalpie (effets de conduction) [49]. Cette convection se rencontre largement dans la nature, comme par exemple les cellules de convection qui se développent dans l'atmosphère, les océans ou le manteau terrestre [31].
Les instabilités de Bénard-Marangoni sont dûes à des variations de tension de surface causées, soit par des gradients de concentration, soit par des gradients de température. Ces instabilités sont représentées par le nombre adimensionnel de Marangoni *Ma* qui mesure le rapport entre les forces de capillarités et les forces visqueuses. Le signe du nombre de Marangoni dépend de la dérivée de la tension de surface par rapport à la concentration de solvant. On retrouve la convection de Bénard-Marangoni lors de la solidification des matériaux de type alliages ou semi-conducteurs [3].

Dans la littérature, on trouve de nombreux travaux qui étudient les cellules de convection. Par exemple Toussaint et al. [53] ont réalisé une étude expérimentale pour une solution de Polyisobuty-

lène/Toluène, ils ont utilisé des caméras dont l'une à infrarouge (Fig. 1.4a) pour mettre en évidence les cellules de convection qui se développent (Fig. 1.4b). Les auteurs se sont intéressé à l'apparition



(a) *Schéma de l'expérience*

(b) *Cellules de convection observées à partir d'une vélocimétrie par image de particules*

FIGURE 1.4 – *Présentation du protocole d'étude de Toussaint et al. [53] dans le cadre de l'étude de séchage d'une solution PIB/Toluène.*

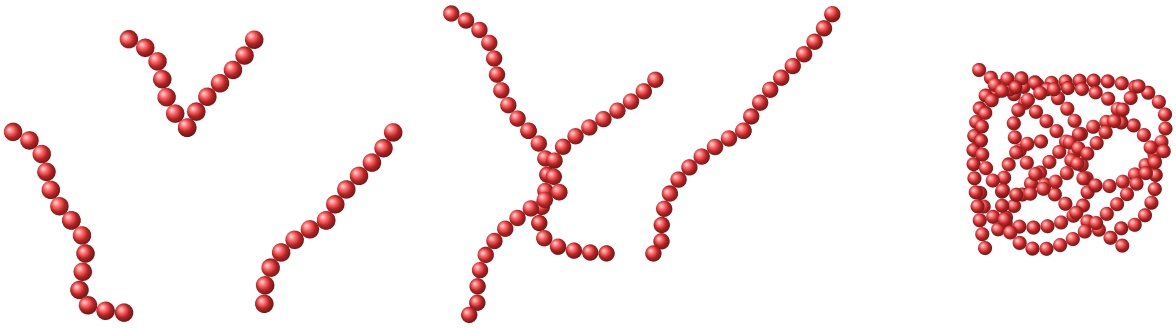
et au moteur de l'écoulement en fonction de l'épaisseur initiale du film fluide et de la viscosité de la solution, et ont noté un comportement complexe révélant deux mécanismes entraînant la convection : le gradient thermique et la tension de surface. Ils insistent sur le caractère transitoire et la durée de vie courte des cellules de convection. Pour les petites épaisseurs de solution, les cellules entretenues par les effets de tension de surface disparaissent avant la fin du régime thermique transitoire. Pour les solutions avec des épaisseurs plus importantes, la convection démarre durant le régime transitoire mais ne dure pas longtemps. Ils ont observé une succession de cellules et de rouleaux de convection et la formation du film après une centaine de secondes et pendant un écoulement convectif entraîné par la poussée d'Archimède.
Uguz [59] a étudié, numériquement et expérimentalement, la physique de la convection qui apparaît lors du séchage d'une solution binaire d'éthanol/sec-butanol contenu dans un récipient hermétiquement fermé, dont la paroi supérieure est froide tandis que la paroi inférieure est chaude. La solution liquide est comprise entre une phase vapeur et la paroi chaude. L'auteur s'est intéressé à l'interaction de l'écoulement avec les transferts thermiques dans la formation des cellules. Il précise qu'il existe une compétition entre les convections thermique et massique pendant le séchage. Perfetti et Iorio [41] ont simulé une solution liquide soumise à un échange convectif avec un gaz inerte, pour une configuration géométrique de base carrée $(50\,mm \times 50\,mm \times 1,6\,mm)$, le couplage entre les contraintes de cisaillement qui entraînent l'interface dans la direction du fluide et la convection thermo-capillaire qui dirige le mouvement dans le sens contraire.

L'apparition des cellules de convection lors du phénomène de séchage d'une huile silicone sans apport de chaleur extérieure, en régime stationnaire, a été étudiée par Mancini et Maza [38]. Les auteurs présentent une étude des cellules qui se développent dans une solution qui s'évapore sans apport de chaleur extérieure, et la comparent avec le cas d'une convection sans évaporation. Ils présentent une étude de bifurcation spatiale en fonction de l'épaisseur du film fluide.

Dans l'étude de la cinétique du séchage d'un film polymère, nous pouvons citer les travaux théoriques de Guerrier et al. [29]. Les auteurs ont modélisé le processus de séchage, ils se sont intéressé à la diffusion du solvant au travers d'une couche de vernis. Leur modèle unidimensionnel prend en compte le mouvement de translation de l'interface liquide-gaz et les transferts thermiques et massiques entre l'interface et la partie gazeuse. L'épaisseur du film diminue à cause de l'évaporation

et sa vitesse de déplacement n'est pas négligeable. La partie gaz de l'étude est en convection forcée en raison du caractère industriel de ses travaux. Dans le prolongement de cette étude, Gorand et al. [28] se sont intéressés aux paramètres physico-chimiques du séchage d'une solution solvant/polymère, en particulier le Polyisobutylène/Toluène. A partir des études de la cinétique du séchage, il a donné une estimation du coefficient de diffusion mutuelle et étudié les instabilités de plissement. En effectuant des expériences rhéologiques, les auteurs expliquent que l'apparition des plis est provoquée par des gradients de concentration et de température qui pilotent les variations de masse volumique ou de tension de surface. Ils considèrent trois phases influençant la mesure de la viscosité :

— Le régime dilué : Les fractions volumiques de polymère sont très faibles. Dans ce cas, les chaînes polymères ne sont pas en contact et peuvent être assimilées à des sphères et leur rayon dépendent de la qualité du solvant et de la longueur des chaînes (Fig. 1.5a).
— Le régime semi-dilué : Les chaînes polymères se rapprochent les unes des autres puis elles s'enchevêtrent, ce qui se traduit par la croissance de la viscosité (Fig. 1.5b).
— Le régime concentré : Le régime concentré correspond aux fraction volumique de polymères très importantes, les temps de relaxation viscoélastiques ne sont plus négligeables et les chaînes polymères forment des pelotes (Fig. 1.5c).



(a) *Régime dilué* (b) *Régime semi-dilué* (c) *Régime concentré*

Figure 1.5 – *Schéma représentant les régimes de dépendance viscosité-fraction volumique de solvant.*

1.2 La déformation de l'interface

Sous l'effet des gradients massique et thermique qui entraînent le développement des cellules de convection de type Bénard et de la diminution de l'épaisseur du liquide, l'interface est soumise aux perturbations qui sont dûes à ces cellules. Bassou et Rharbi [4] ont étudié expérimentalement les mécanismes qui sont responsables de la déformation de l'interface liquide-gaz pour une solution de polystyrène/toluène. La figure 1.6 illustre le mécanisme de déformation de l'interface. Les auteurs modélisent une cellule convective avec (B) le bord de la cellule et (E) le centre. Dans le cas d'une évaporation, un fluide riche en solvant monte vers l'interface liquide-gaz (de (D) vers (E)) ce qui induit un gradient de concentration au niveau de l'interface. Si cet écoulement est important, il peut éliminer le gradient de concentration entre le bord (B) et le centre (E). Le solvant migrant de (E) vers (B) s'évapore ce qui entraîne une plus faible concentration en solvant en (B). Avec le mouvement de translation de l'interface, les cellules sont déformées ce qui explique l'ondulation. Selon les auteurs, les instabilités de Bénard-Marangoni jouent un role prédominant dans cette déformation. La combinaison de ces instabilités avec le séchage génère des ondulations, leurs longueurs d'ondes sont contrôlées par les instabilités. Les amplitudes croissent en fonction du phénomène d'évaporation.

Gambaryan-Roisman [25, 26] a développé un modèle d'évaporation impliquant la convection de Marangoni et la déformation d'un film. Les équations d'évolution ont été linéarisées dans le cas de petites valeurs de nombre de Marangoni et d'une faible déformation d'interface. Ces travaux

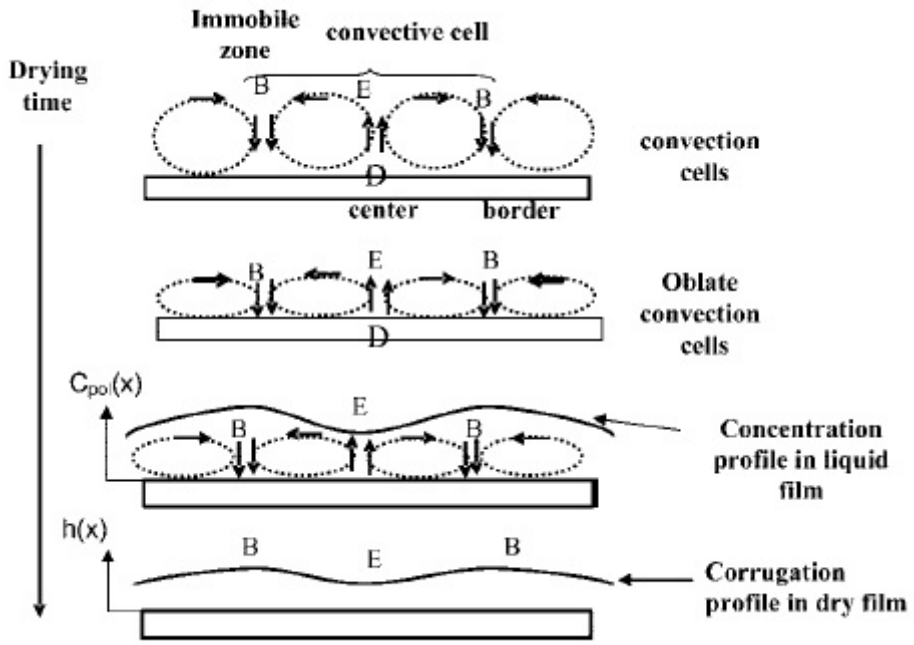


FIGURE 1.6 – *Représentation de la déformation de l'interface [4]*

ont été effectués sur différents substrats. Selon l'auteur, la non-uniformité de la distribution de température à l'interface solide-liquide provoque une non-uniformité de température à l'interface liquide-gaz ce qui conduit à des contraintes dite de Marangoni et à la déformation du film. Elle a établi que cette déformation d'interface liquide-gaz augmente avec le temps et elle a effectué une étude similaire en faisant varier la conductivité thermique du substrat [25]. Serpetsi et Yiantsios [45] ont examiné théoriquement les caractéristiques des instabilités solutocapillaires de Marangoni dans le cas de l'évaporation d'une solution solvant-soluté en résolvant les équations de Navier-Stokes et de conservation des espèces à viscosité constante. Ils ont défini leur problème avec des paramètres adimensionnels comme les nombres de Marangoni, d'évaporation, capillaire, de Schmidt. Dans leur étude, le nombre de Schmidt a été maintenu constant et ils posent comme hypothèse, que les propriétés de transport du film liquide restent constants tout le long du séchage. Cette hypothèse ne s'applique que pour des solutions solvant-soluté très diluées. Ces mêmes auteurs ont montré plus tard que la déformation de l'interface liquide-gaz provoquée par la capillarité, pour une solution solvant-polymère à viscosité variable, est proportionnelle au nombre capillaire. De plus, la décroissance du champ de vitesse est provoquée par l'augmentation de la viscosité de la solution [62].

Cavadini et al. [12] ont étudié la déformation de surface d'un film polymère due à l'inhomogénéité du séchage, l'apparition des instabilités et l'influence de la cinétique de séchage dans le système quand la tension de surface dépend de la température et de la composition de la solution. Il s'agit d'une solution de methanol/poly(vinyl acetate) disposée sur une plaque d'aluminium. Selon les auteurs, l'effet solutocapillaire est la force qui domine derrière les déformations de surface dûes au séchage sur le substrat avec des propriétés matérielles inhomogènes.

1.3 La thermodiffusion

Les effets croisés qui sont dûs au couplage entre les phénomènes de diffusion et de conduction thermique, sans présence de réaction chimique et de force extérieure, représentent la thermodiffusion. Elle se compose de deux effets :

— L'effet Soret (Effet du flux de chaleur sur le flux de matière) (Fig 1.7).
— L'effet Dufour (Effet du flux de matière sur le flux de chaleur).

FIGURE 1.7 – *Schéma de l'effet Soret [11]*

Elle est exploitée dans l'industrie pour purifier des écoulements gazeux chargés en particules en les faisant circuler dans des conduites, où l'on impose un gradient de température dans la direction transversale, ou encore dans les puits de pétrole en provoquant la montée des composés lourds à l'inverse de l'influence de la gravité. On la retrouve aussi dans les logements avec le dépôt de poussière dans les angles des murs et des plafonds (corps froids), au dessus d'un radiateur (corps chaud) à cause de la montée du flux d'air chaud le long du mur.

Srinivasan et Saghir [47] ont synthétisé trois méthodes pour déterminer la thermodiffusion : La thermodynamique linéaire en situation de non-équilibre ou LNET, le réseau de neurones artificiels, les méthodes algébriques. Dans les méthodes algébriques, on note trois modèles établis par Khazanovich [33] (Eq. 1.2), Semenov et Schimpf [44] (Eq. 1.3), Brenner [10] (Eq. 1.4).

$$\mathcal{D}_T = \frac{\Delta_T}{\mu_{eff}} \tag{1.1}$$

Parmi ces équations, on trouve différents paramètres qui dépendent des caractéristiques du polymère, notamment le cas de l'équation 1.1 dont le terme Δ_T se détermine expérimentalement [42]. Malheureusement, on ne trouve pas dans la littérature des articles quantitatifs présentant les résultats de ce paramètre pour différents polymères. Le coefficient de Soret est gouverné par la viscosité microscopique locale μ_{eff} et ce paramètre est égal à la viscosité du solvant pour les solutions diluées.

$$\mathcal{D}_T = \frac{\frac{\kappa_B T}{6\pi\eta_s R_b} E_{A,s}}{RT^2} \tag{1.2}$$

L'équation 1.2 a été trouvée par Khazanovich [33] en utilisant le modèle du collier de perles, c'est à dire que la molécule de polymère est remplacée par un collier composé de n perles interagissant avec une énergie potentielle V. Son équation dépend du coefficient d'autodiffusion des perles $D_b = \frac{\kappa_B T}{6\pi\eta_s R_b}$, d'une énergie d'activation du solvant $E_{A,s} = -RT^2 \frac{d\ln(\eta_s)}{dT}$ qui est fonction de la viscosité.

$$\mathcal{D}_T = \frac{8\beta_s\sqrt{A_m\ A_s}r_m^2}{27\ \nu_s\ \mu_{eff}}\left(1 - \sqrt{\frac{A_s}{A_m}}\right) \tag{1.3}$$

Pour l'équation (1.3), le coefficient de thermodiffusion dépend des propriétés du monomère et du solvant, où β_s est le coefficient d'expansion thermique cubique du solvant, r_m le rayon du monomère, A_m et A_s sont les constantes de Hamaker du monomère et de solvant, ν_s le volume occupé par chaque molécule de solvant, et se calcule à partir de l'expression analytique $\nu_s = M_s/(\rho_s N_a)$, avec

N_a la constante d'Avogadro.

$$\mathcal{D}_T = \lambda \beta_s D_s^s \tag{1.4}$$

Pour l'équation 1.4, le coefficient de thermodiffusion dépend du produit des coefficients d'auto-diffusion, d'expansion thermique cubique et d'un facteur réel du gaz qui vaut l'unité dans le cas des gaz parfaits.

1.4 Étude des instabilités

Kang et Choi [32] ont étudié la stabilité d'une couche liquide refroidie rapidement. Pour déterminer le temps critique d'apparition de la convection, ils utilisent deux méthodes : le modèle du temps gelé et le modèle de propagation. Le modèle du temps gelé, plus communément appelé « Frozen-time model », consiste à figé le profil de température à un instant t . Cette méthode donne de meilleurs résultats sur les temps longs, les auteurs émettent l'hypothèse que l'état de base évolue moins vite que les perturbations du système. Il est connu pour valider les problèmes de convection de Rayleigh-Bénard et est indépendant du nombre de Prandtl. Machrafi et al. [37] ont exploré l'importance relative des mécanismes d'instabilité. Ils ont utilisé le modèle du temps gelé pour étudier les temps et l'épaisseur d'apparition de la convection pour une gamme d'épaisseur de solution. Sun [48] utilise une méthode similaire au modèle du temps gelé permettant de prédire l'apparition des cellules de convection causée par les instabilités Rayleigh-Bénard et Bénard-Marangoni. Il en déduit des relations entre des nombres adimensionnels, les nombres d'ondes critiques et le temps d'apparition.

Le modèle de propagation permet de trouver le temps d'apparition de la convection pour les temps courts dans le cas de solution où le champ de température est non-linéaire. Nous pouvons citer la théorie de l'amplification, qui consiste à perturber une solution à l'instant initial, la laisser se propager et rechercher l'instant t à partir duquel l'amplitude est maximale. Mais cette méthode n'est pas adaptée pour les problèmes transitoires. En repartant de cette théorie, Doumenc et al. [19] ont développé la méthode non-normale pour caractériser la stabilité dans des problèmes transitoires de Rayleigh Bénard Marangoni avec une solution dont l'interface liquide-gaz a été refroidi rapidement. Les temps critiques et les longueurs d'ondes sont basés sur quatre paramètres adimensionnels :Rayleigh, Marangoni, Prandtl et Biot.

D'autres études, celles-ci d'ordre numérique, se sont intéressé à l'apparition des instabilités de types Rayleigh-Bénard et Bénard-Marangoni pour des olutions binaires. Nous pouvons citer dans le cas d'une solution de Polyisobutylène/Toluène les travaux de Touazi et al. [51] et Trouette [56] portant respectivement l'une sur la convection d'origine thermique, l'autre sur les convections thermique et massique découplées. En raison de la nature transitoire des transferts dans leur problème d'évaporation, les deux auteurs déstabilisent la solution à l'aide de perturbations aléatoires aux conditions initiales, afin de s'affranchir des erreurs numériques susceptibles de provoquer une convection non physique. A partir de ces travaux, nous allons étudier les seuils de transition convectif-diffusif, en utilisant une autre façon de déstabiliser la solution, et nous procéderons au couplage thermique-massique, où nous présenterons les seuils de transition.

2 Équations et méthodes numériques

Sommaire

2.1 Evaporation d'une solution liquide . . . 15
2.1.1 Équations générales de conservation d'une solution binaire . . . 15
2.1.2 Équations de bilan à l'interface liquide/gaz . . . 16
2.2 Modèles physiques simplifiés . . . 19
2.2.1 Hypothèses principales . . . 19
2.2.2 Modèle couplé thermique/massique . . . 24
2.2.3 Modèle thermique . . . 25
2.2.4 Modèle massique . . . 27
2.3 Formalisme adimensionnel . . . 27
2.3.1 Modèle couplé thermique/massique . . . 28
2.3.2 Modèle thermique . . . 29
2.3.3 Modèle massique . . . 30
2.4 Méthodes numériques et validation du code de calcul . . . 31
2.4.1 Schéma de discrétisation et algorithme de résolution . . . 31
2.4.2 Validation . . . 33

Ce chapitre a principalement pour but d'établir les différents modèles mathématiques, susceptibles de représenter les écoulements et les transferts de chaleur, pour une solution de PIB/toluène, s'évaporant à l'air libre. En se basant sur les bilans généraux de quantité de mouvement et d'énergie, nous utiliserons des simplifications du problème physique, pour établir différents modèles : un modèle couplé thermique/massique et deux modèles découplés, l'un thermique et l'autre massique. Ensuite, les méthodes numériques sont présentées avant qu'une étape de validation soient réalisée.

2.1 Evaporation d'une solution liquide

L'objectif de cette section est de définir les équations et les conditions aux limites d'un problème général d'évaporation d'une solution binaire contenue dans un récipient ouvert en contact avec l'atmosphère.

2.1.1 Équations générales de conservation d'une solution binaire

Pour une solution binaire solvant (s) polymère (p), mélange non réactif soumise aux forces de gravité ($\overrightarrow{g}$), les équations générales de conservation de masse, de quantité de mouvement, d'énergie et de conservation de la masse, écrites sous forme enthalpique avec la variable température s'écrivent [6]

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla.(\rho \overrightarrow{v}) = 0 \tag{2.1a}$$

$$\frac{\partial \rho \overrightarrow{v}}{\partial t} + \nabla.\left(\rho \overrightarrow{v} \otimes \overrightarrow{v}\right) = -\nabla P + \nabla.\overline{\overline{\tau}} + \rho \overrightarrow{g} \tag{2.1b}$$

$$c_p \left(\frac{\partial \rho T}{\partial t} + \nabla.\left(\rho \overrightarrow{v} T\right) \right) = -\nabla.\left(\overrightarrow{q_{Cond}} + \overrightarrow{q_{Diff}} + \overrightarrow{q_{Duf}}\right) - \left(\frac{\partial \ln \rho}{\partial \ln T}\right) \frac{dP}{dt} + \overline{\overline{\tau}} : \nabla \overrightarrow{v} + \sum_{i \in \{s,p\}} h_i \nabla.\overrightarrow{j_i} \tag{2.1c}$$

$$\frac{\partial \rho \omega_s}{\partial t} + \nabla.\left(\rho \omega_s \overrightarrow{v}\right) = -\nabla.\overrightarrow{j_s} \tag{2.1d}$$

avec ρ la masse volumique, c_p la capacité thermique massique à pression constante, $\overrightarrow{v}$ la vitesse, $\overline{\overline{\tau}}$ le tenseur des contraintes visqueuses, P la pression, T la température du mélange, ω_i et h_i la fraction massique et l'enthalpie partielle massique de l'espèce i. Le vecteur $\overrightarrow{j_i} = -\rho\left(D\nabla\omega_i + D_i^T \omega_i \left(1-\omega_i\right)\nabla T\right)$ est le flux massique relatif de l'espèce i par rapport à la vitesse barycentrique du mélange (la dépendance aux gradients de pression est négligée). Ce flux se compose d'une contribution fickienne, qui traduit le glissement entre la vitesse barycentrique du centre de masse du mélange et de l'espèce, et d'un terme de thermodiffusion (effet Soret) qui caractérise la séparation des composants d'un mélange sous l'effet des gradients de température [11].

Les équations de bilan (2.1a) et (2.1b) définissent les conservations de la masse et de la quantité de mouvement du mélange. Dans l'équation de la température (2.1c), les deux derniers termes représentent les puissances dues aux forces de pression et aux effets visqueux. Le flux thermique se compose de 3 contributions [6] :

- $\overrightarrow{q_{Cond}}$ décrit le transfert de la chaleur par conduction dans le mélange et son expression est donnée par la loi de Fourier $\overrightarrow{q_{Cond}} = -k\nabla T$ avec k la conductivité thermique.
- $\overrightarrow{q_{Diff}} = \sum_{i\in\{s,p\}} h_i \overrightarrow{j_i}$ décrit le transport de la chaleur par les flux massiques de matière $\overrightarrow{j_i}$, $i \in \{s,p\}$.
- $\overrightarrow{q_{Duf}}$ est l'effet Dufour qui représente le flux de chaleur engendré par les différences entre les vitesses relatives de diffusion massique des constituants. Pour un liquide, cette contribution est généralement négligeable [30]. Pour un gaz parfait à N constituants, $\overrightarrow{q_{Duf}} = \sum_{\alpha=1}^{N} \sum_{\beta=1;\beta\neq\alpha}^{N} \frac{cRTx_\alpha x_\beta}{\rho_\alpha} \frac{D_\alpha^T}{\mathcal{D}_{\alpha\beta}} \left(\frac{\overrightarrow{j_\alpha}}{\rho_\alpha} - \frac{\overrightarrow{j_\beta}}{\rho_\beta}\right)$ où $c = \sum_{\alpha=1}^{N} c_\alpha$ est la densité molaire de la solution, R est la constante des gaz parfaits, x_α et x_β sont les fractions molaires des espèces α et β, $\rho_\alpha = m_\alpha / V_{total}$ est la concentration massique de α, D_α^T est le coefficient de thermodiffusion multi-composant et $\mathcal{D}_{\alpha\beta}$ est la diffusivité multi-composant de Maxwell-Stefan.

Le tenseur des contraintes présent dans les équations (2.1b) et (2.1c) est issu d'un modèle newtonien de la solution : $\overline{\overline{\tau}} = \mu(\nabla \overrightarrow{v} + (\nabla \overrightarrow{v})^T)$ (contribution volumique négligée). Cette approximation est licite si le temps caractéristique de la dynamique est très grand devant le temps de relaxation des chaînes polymères constituant la solution liquide, ce qui est le cas dans les problèmes traités dans ce mémoire.

2.1.2 Équations de bilan à l'interface liquide/gaz

Pour la présentation des conditions de bilan à l'interface, nous utiliserons l'indice g ($_g$) et l ($_l$) pour désigner respectivement les phases gazeuse et liquide. Les vecteurs unitaires normaux à l'interface et sortant du liquide et du gaz sont notés respectivement $\overrightarrow{n_l}$ et $\overrightarrow{n_g}$, avec $\overrightarrow{n_g} = -\overrightarrow{n_l}$. La vitesse de l'interface entre les phases est notée $\overrightarrow{v_{\text{int}}}$. Cette interface est localement repérée par un trièdre orthonormal $(\overrightarrow{n_l}, \overrightarrow{t_1}, \overrightarrow{t_2})$ tel que $(\overrightarrow{t_1}, \overrightarrow{t_2})$ définit une base dans le plan local tangent à l'interface (Fig 2.1). Dans les expressions des bilans de flux, nous ne tiendrons pas compte de l'épaisseur de l'interface, ce qui revient à supposer qu'elle est d'épaisseur nulle [16].

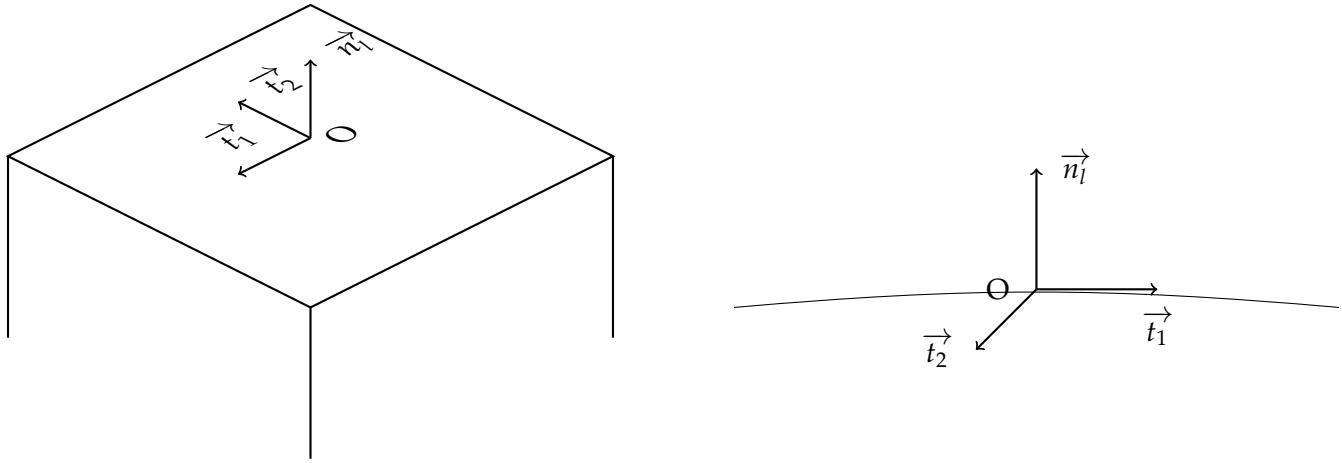


FIGURE 2.1 – *Schéma de l'interface liquide-gaz*

2.1.2.1 Équilibre thermodynamique

L'équilibre thermodynamique à l'interface se traduit par les égalités (voir [16])

— des températures à l'interface

$$T_g = T_l = T_{\text{int}} \tag{2.2}$$

— des composantes tangentielles de vitesse de part et d'autre de l'interface

$$\overrightarrow{v_g}.\overrightarrow{t_i} = \overrightarrow{v_l}.\overrightarrow{t_i} = \overrightarrow{v_t}.\overrightarrow{t_i}, \qquad i = 1,2 \tag{2.3}$$

avec $\overrightarrow{v_t}$ la vitesse du fluide le long de l'interface.

— des potentiels chimiques. Pour un mélange de gaz parfaits, la fraction massique de solvant gazeux à l'interface s'écrit

$$\omega_{s,g} = \frac{P_s^{vs}(T_{\text{int}})}{\rho_g r_{s,g} T_{\text{int}}} \times a_s(\varphi_{s,l,\text{int}}, T_{\text{int}}) \tag{2.4}$$

avec $P_s^{vs}(T_{\text{int}})$ la pression de vapeur saturante pour le solvant à la température de l'interface T_{int}, $a_s(\varphi_{s,l,\text{int}}, T_{\text{int}})$ l'activité du solvant dans la solution et $r_{s,g} = R/\mathcal{M}_{s,g}$ le rapport de la constante des gaz parfaits et de la masse molaire du solvant gazeux. Il faut noter que sous l'hypothèse d'un mélange liquide idéal, l'activité du solvant dans la solution vaut simplement $a_s = 1$.

2.1.2.2 Continuité des flux de matière

Les continuités des flux de matière doivent être imposées pour chaque espèce. Sachant que seul le solvant s'évapore, il est donc présent dans les phases liquide et gazeuse. Nous ne tiendrons pas compte de l'air dissous dans la solution, la continuité des flux de matière donne donc

— pour le solvant

$$\left(\omega_{s,l}\rho_l(\overrightarrow{v_l}-\overrightarrow{v_{\text{int}}})+\overrightarrow{j_{s,l}}\right).\overrightarrow{n_l}-\left(\omega_{s,g}\rho_g(\overrightarrow{v_g}-\overrightarrow{v_{\text{int}}})+\overrightarrow{j_{s,g}}\right).\overrightarrow{n_l}=0 \tag{2.5a}$$

— pour le polymère

$$\left(\omega_{p,l}\rho_l(\overrightarrow{v_l}-\overrightarrow{v_{\text{int}}})+\overrightarrow{j_{p,l}}\right).\overrightarrow{n_l}=0 \tag{2.5b}$$

— pour l'air

$$\left(\omega_{a,g}\rho_g(\overrightarrow{v_g}-\overrightarrow{v_{\text{int}}})+\overrightarrow{j_{a,g}}\right).\overrightarrow{n_l}=0 \tag{2.5c}$$

Des équations (2.5b) et (2.5c), on obtient

$$(\overrightarrow{v_l}-\overrightarrow{v_{\text{int}}}).\overrightarrow{n_l}=-\frac{\overrightarrow{j_{p,l}}.\overrightarrow{n_l}}{\omega_{p,l}\rho_l},\qquad(\overrightarrow{v_g}-\overrightarrow{v_{\text{int}}}).\overrightarrow{n_l}=-\frac{\overrightarrow{j_{a,g}}.\overrightarrow{n_l}}{\omega_{a,g}\rho_g} \tag{2.6}$$

En remplaçant ces deux relations dans (2.5a), on trouve :

$$\left(-\frac{\omega_{s,l}}{\omega_{p,l}}\overrightarrow{j_{p,l}}+\overrightarrow{j_{s,l}}\right).\overrightarrow{n_l}=\left(-\frac{\omega_{s,g}}{\omega_{a,g}}\overrightarrow{j_{a,g}}+\overrightarrow{j_{s,g}}\right).\overrightarrow{n_l}$$

En écrivant que $\omega_{a,g}+\omega_{s,g}=1$, $\omega_{s,l}+\omega_{p,l}=1$, $\overrightarrow{j_{p,l}}=-\overrightarrow{j_{s,l}}$ et $\overrightarrow{j_{a,g}}=-\overrightarrow{j_{s,g}}$, nous obtenons une relation exprimant le saut du flux de diffusion relatif de solvant de part et d'autre de l'interface :

$$\overrightarrow{j_{s,l}}.\overrightarrow{n_l}=\frac{1-\omega_{s,l}}{1-\omega_{s,g}}\overrightarrow{j_{s,g}}.\overrightarrow{n_l} \tag{2.7}$$

Pour les vitesses du mélange, nous devons également déterminer une condition de raccord à l'interface. Pour cela, nous utilisons la combinaison linéaire (2.5b)$\times\omega_{a,g}\rho_g-$(2.5c)$\times\omega_{p,l}\rho_l$:

$$(\overrightarrow{v_l}-\overrightarrow{v_g}).\overrightarrow{n_l}=\left(\frac{1}{\omega_{a,g}\rho_g}\overrightarrow{j_{a,g}}-\frac{1}{\omega_{p,l}\rho_l}\overrightarrow{j_{p,l}}\right).\overrightarrow{n_l}$$

En introduisant les caractéristiques du solvant

$$(\overrightarrow{v_l}-\overrightarrow{v_g}).\overrightarrow{n_l}=\left(\frac{1}{(\omega_{s,g}-1)\rho_g}\overrightarrow{j_{s,g}}-\frac{1}{(\omega_{s,l}-1)\rho_l}\overrightarrow{j_{s,l}}\right).\overrightarrow{n_l}$$

et en utilisant l'expression (2.7), nous obtenons :

$$(\overrightarrow{v_l}-\overrightarrow{v_g}).\overrightarrow{n_l}=\left(\frac{1}{\rho_g}-\frac{1}{\rho_l}\right)\frac{1}{\omega_{s,l}-1}\overrightarrow{j_{s,l}}.\overrightarrow{n_l} \tag{2.8}$$

Il faut donc noter que les vitesses normales des mélanges de part et d'autre de l'interface ne sont pas continues.

2.1.2.3 Conditions sur les flux de quantité de mouvement

A l'interface entre deux fluides non-miscibles se développe une tension de surface (A.1) qui est engendrée au niveau microscopique par le déséquilibre des forces électrostatiques de Van der Walls. Le saut de la contrainte totale entre le liquide et le gaz est donné par la tension superficielle :

$$\left(\rho_l \overrightarrow{v_l}(\overrightarrow{v_l} - \overrightarrow{v_{\text{int}}}).\overrightarrow{n_l} - \overline{\overline{\sigma_l}}.\overrightarrow{n_l}\right) - \left(\rho_g \overrightarrow{v_g}(\overrightarrow{v_g} - \overrightarrow{v_{\text{int}}}).\overrightarrow{n_l} - \overline{\overline{\sigma_g}}.\overrightarrow{n_l}\right) = \gamma(\nabla_t.\overrightarrow{n_l})\overrightarrow{n_l} - \nabla_t\gamma \tag{2.9}$$

avec γ la tension de surface, ∇_t le gradient tangent à l'interface, $\nabla_t.$ est la divergence dans le plan de l'interface, et $\overline{\overline{\sigma}} = -P\overline{\overline{I}} + \overline{\overline{\tau}}$ le tenseur des contraintes.

— En utilisant la continuité de la composante tangentielle des vitesses des mélanges (2.3) ainsi que les relations (2.6), on obtient que la contribution de transport disparaît :

$$\overrightarrow{t_i}.(\overline{\overline{\sigma_g}} - \overline{\overline{\sigma_l}}).\overrightarrow{n_l} = -\nabla_t\gamma.\overrightarrow{t_i}, \qquad i = 1,2 \tag{2.10}$$

— En notant $w_i = \overrightarrow{v_i}.\overrightarrow{n_l}$, l'expression projetée dans la direction normale s'écrit

$$\left(\rho_l w_l(\overrightarrow{v_l} - \overrightarrow{v_{\text{int}}}).\overrightarrow{n_l} - \overrightarrow{n_l}.\overline{\overline{\sigma_l}}.\overrightarrow{n_l}\right) - \left(\rho_g w_g(\overrightarrow{v_g} - \overrightarrow{v_{\text{int}}}).\overrightarrow{n_l} - \overrightarrow{n_l}.\overline{\overline{\sigma_g}}.\overrightarrow{n_l}\right) = \gamma\nabla_t.\overrightarrow{n_l}$$

En suivant la même démarche que précédemment, on obtient :

$$\frac{w_l - w_g}{1-\omega_{s,l}}\overrightarrow{j_{s,l}}.\overrightarrow{n_l} + \overrightarrow{n_l}.(\overline{\overline{\sigma_g}} - \overline{\overline{\sigma_l}}).\overrightarrow{n_l} = \gamma\nabla_t.\overrightarrow{n_l}$$

L'exploitation de l'expression du saut de la vitesse normale du mélange (2.8) donne

$$-\left(\frac{1}{\rho_g} - \frac{1}{\rho_l}\right)\frac{1}{(1-\omega_{s,l})^2}(\overrightarrow{j_{s,l}}.\overrightarrow{n_l})^2 + \overrightarrow{n_l}.(\overline{\overline{\sigma_g}} - \overline{\overline{\sigma_l}}).\overrightarrow{n_l} = \gamma\nabla_t.\overrightarrow{n_l}$$

soit encore

$$\overrightarrow{n_l}.(\overline{\overline{\sigma_g}} - \overline{\overline{\sigma_l}}).\overrightarrow{n_l} = \gamma\nabla_t.\overrightarrow{n_l} + \left(\frac{1}{\rho_g} - \frac{1}{\rho_l}\right)\frac{1}{(1-\omega_{s,l})^2}(\overrightarrow{j_{s,l}}.\overrightarrow{n_l})^2 \tag{2.11}$$

2.1.2.4 Conditions thermiques

En notant le flux de chaleur $\overrightarrow{q} = \overrightarrow{q_{cond}} + \overrightarrow{q_{Diff}} + \overrightarrow{q_{Duf}}$, le saut de flux d'énergie totale dans le repère de l'interface mobile s'écrit :

$$\begin{aligned}&\left(\overrightarrow{q_l}.\overrightarrow{n_l} - (\overline{\overline{\sigma_l}}.\overrightarrow{n_l}).\overrightarrow{v_l} + \rho_l(u_l + v_l^2/2)(\overrightarrow{v_l} - \overrightarrow{v_{\text{int}}}).\overrightarrow{n_l}\right)\\ &\qquad - \left(\overrightarrow{q_g}.\overrightarrow{n_l} - (\overline{\overline{\sigma_g}}.\overrightarrow{n_l}).\overrightarrow{v_g} + \rho_g(u_g + v_g^2/2)(\overrightarrow{v_g} - \overrightarrow{v_{\text{int}}}).\overrightarrow{n_l}\right) = -\nabla_t.(\gamma\overrightarrow{v_t}) + \nabla_t.\overrightarrow{q_{\text{int}}}\end{aligned} \tag{2.12}$$

avec u_l et u_g les énergies internes volumiques du liquide et du gaz. Le terme de droite de l'équation (2.12) représente la somme de la puissance élastique associée à la tension de surface et au flux de chaleur surfacique échangé le long de l'interface ($[q_{\text{int}}] = W/m$).

Le bilan d'énergie cinétique (ou mécanique) à l'interface s'obtient en multipliant l'équation de quantité de mouvement (2.9) par la vitesse du fluide à l'interface $\overrightarrow{v_p}$. Celle-ci a pour composante tangente $\overrightarrow{v_t}$ et pour composante normale $\overrightarrow{v_{\text{int}}}.\overrightarrow{n_l}$:

$$\overrightarrow{v_p} = (\overrightarrow{v_{\text{int}}}.\overrightarrow{n_l})\overrightarrow{n_l} + \overrightarrow{v_t}$$

Le bilan s'écrit :

$$\begin{aligned}&\left((\rho_l(\overrightarrow{v_l} - \overrightarrow{v_{\text{int}}}).\overrightarrow{n_l})\overrightarrow{v_l}.\overrightarrow{v_p} - (\overline{\overline{\sigma_l}}.\overrightarrow{n_l}).\overrightarrow{v_p}\right) - \left((\rho_g(\overrightarrow{v_g} - \overrightarrow{v_{\text{int}}}).\overrightarrow{n_l})\overrightarrow{v_g}.\overrightarrow{v_p} - (\overline{\overline{\sigma_g}}.\overrightarrow{n_l}).\overrightarrow{v_p}\right) =\\ &\qquad\qquad \gamma(\nabla_t.\overrightarrow{n_l})\overrightarrow{v_p}.\overrightarrow{n_l} - \overrightarrow{v_p}.\nabla_t\gamma\end{aligned}$$

En soustrayant la condition de saut d'énergie mécanique du saut d'énergie totale (2.12), et en utilisant l'expression de la vitesse $\overrightarrow{v_p}$ pour exprimer le membre droit, on obtient :

$$\begin{aligned}(\overrightarrow{q_l}.\overrightarrow{n_l} - (\overline{\overline{\sigma_l}}.\overrightarrow{n_l})(\overrightarrow{v_l} - \overrightarrow{v_p}) + \rho_l(u_l + v_l^2/2 - \overrightarrow{v_l}.\overrightarrow{v_p})(\overrightarrow{v_l} - \overrightarrow{v_{\text{int}}}).\overrightarrow{n_l}) \\ - \left(\overrightarrow{q_g}.\overrightarrow{n_l} - (\overline{\overline{\sigma_g}}.\overrightarrow{n_l})(\overrightarrow{v_g} - \overrightarrow{v_p}) + \rho_g(u_g + v_g^2/2 - \overrightarrow{v_g}.\overrightarrow{v_p})(\overrightarrow{v_g} - \overrightarrow{v_{\text{int}}}).\overrightarrow{n_l}\right) = \\ - \gamma\nabla_t.\overrightarrow{v_p} + \nabla_t.\overrightarrow{q_{\text{int}}} \quad (2.13)\end{aligned}$$

Cette relation peut se réécrire en fonction de l'enthalpie massique $h = u + P/\rho$ et du tenseur des contraintes visqueuses pour chacune des phases :

$$\begin{aligned}(\overrightarrow{q_l}.\overrightarrow{n_l} - (\overline{\overline{\tau_l}}.\overrightarrow{n_l})(\overrightarrow{v_l} - \overrightarrow{v_p}) + \rho_l(h_l + v_l^2/2 - \overrightarrow{v_l}.\overrightarrow{v_p})(\overrightarrow{v_l} - \overrightarrow{v_{\text{int}}}).\overrightarrow{n_l}) \\ - \left(\overrightarrow{q_g}.\overrightarrow{n_l} - (\overline{\overline{\tau_g}}.\overrightarrow{n_l})(\overrightarrow{v_g} - \overrightarrow{v_p}) + \rho_g(h_g + v_g^2/2 - \overrightarrow{v_g}.\overrightarrow{v_p})(\overrightarrow{v_g} - \overrightarrow{v_{\text{int}}}).\overrightarrow{n_l}\right) = \\ - \gamma\nabla_t.\overrightarrow{v_p} + \nabla_t.\overrightarrow{q_{\text{int}}} \quad (2.14)\end{aligned}$$

Dans le problème de l'évaporation, les échelles de vitesses sont faibles. En particulier dans les études qui vont suivre, elles sont de l'ordre de la vitesse de diffusion thermique ou massique. Ainsi dans le bilan précédent, les contributions dans lesquelles l'échelle de vitesse apparaît au cube sont négligeables. Si de plus on néglige les contributions de l'interface (divergence de la vitesse dans le plan tangent à l'interface et fuites thermiques transverses), on retrouve le résultat classique

$$(\overrightarrow{q_l}.\overrightarrow{n_l} + \rho_l h_l(\overrightarrow{v_l} - \overrightarrow{v_{\text{int}}}).\overrightarrow{n_l}) - (\overrightarrow{q_g}.\overrightarrow{n_l} + \rho_g h_g(\overrightarrow{v_g} - \overrightarrow{v_{\text{int}}}).\overrightarrow{n_l}) \approx 0$$

En utilisant les relations (2.6) et $\overrightarrow{j_{p,l}} = -\overrightarrow{j_{s,l}}$ et $\overrightarrow{j_{a,g}} = -\overrightarrow{j_{s,g}}$, la relation précédente donne :

$$\left(\overrightarrow{q_l}.\overrightarrow{n_l} + h_l\frac{\overrightarrow{j_{s,l}}.\overrightarrow{n_l}}{1-\omega_{s,l}}\right) - \left(\overrightarrow{q_g}.\overrightarrow{n_l} + h_g\frac{\overrightarrow{j_{s,g}}.\overrightarrow{n_l}}{1-\omega_{s,g}}\right) \approx 0$$

En utilisant la relation (2.7) et en notant $L = h_g - h_l$ l'enthalpie d'évaporation massique, on obtient

$$(\overrightarrow{q_l} - \overrightarrow{q_g}).\overrightarrow{n_l} \approx \frac{L}{1-\omega_{s,l}}\overrightarrow{j_{s,l}}.\overrightarrow{n_l} \quad (2.15)$$

2.2 Modèles physiques simplifiés

La solution se compose d'un solvant, le toluène et d'un soluté, le polyisobutylène aussi noté PIB (Tab 2.1).

La pression partielle de solvant dans l'air étant très faible, celui-ci s'évapore en engendrant une diminution de sa concentration et de la température du mélange à la surface libre. Les inhomogénéités thermiques et massiques se propageant au cours du temps dans l'épaisseur du film fluide, une déstabilisation des champs diffusifs peut apparaître. La convection engendrée est donc d'origine naturelle dans le sens où aucun forçage mécanique n'est imposé.

2.2.1 Hypothèses principales

2.2.1.1 Grandeurs physiques

Les travaux menés dans ce mémoire se concentrent sur l'étude des seuils de transition qui correspondent à l'apparition d'un écoulement convectif, c'est-à-dire une vitesse du fluide dont l'échelle de grandeur est de l'ordre du rapport entre la diffusivité thermique ($\alpha \approx 10^{-7}\, m^2/s$) ou massique

Paramètre \ Composant	Polyisobutylène	Toluène
Conductivité thermique k	$0,13\,W.m^{-1}.K^{-1}$	$0,142\,W.m^{-1}.K^{-1}$
Capacité calorifique c_p	$1960\,J.kg^{-1}.K^{-1}$	$1710\,J.kg^{-1}.K^{-1}$
Masse volumique ρ	$917\,kg.m^{-3}$	$866\,kg.m^{-3}$
Coefficient d'expansion thermique β_T	$5,5\times10^{-4}\,K^{-1}$ $(T=300\,K)$	$1,07\times10^{-3}\,K^{-1}$
Coefficient d'expansion massique β_m	$5,89\times10^{-2}$ (Système PIB/Toluène)	
Coefficient de chaleur latente de vaporisation L	$396\,kJ\,kg^{-1}$ (Système PIB/Toluène)	
Flux d'évaporation Φ_s	$3,37\times10^{-4}\,kg\,m^{-2}\,s^{-1}$ (Système PIB/Toluène)	
Coefficient d'échange convectif H_{th} au niveau de l'interface liquide-gaz	$28\,W\,m^{-2}\,K^{-1}$ (Système PIB/Toluène)	
Tension de surface γ	$33,6\times10^{-3}\,N.m^{-1}$	$27,92\times10^{-3}\,N.m^{-1}$
$d\gamma/dT$	$-6,4\times10^{-5}\,N.m^{-1}.K^{-1}$	$-11,9\times10^{-5}\,N.m^{-1}.K^{-1}$
$d\gamma/d\varphi$	$5,4\times10^{-3}$ (Système PIB/Toluène)	
Diffusivité thermique α	$0,72\times10^{-7}\,m^2.s^{-1}$	$0.97\times10^{-7}\,m^2.s^{-1}$
Diffusivité massique D	$10^{-10}\,m^2.s^{-1}$ (Système PIB/Toluène)	
Vitesse d'évaporation v_{evap}	$3\times10^{-7}\,m.s^{-1}$ (Système PIB/Toluène)	
Viscosité μ	$\log(\mu)=8,235+14,02X+6,575X^2+1,392X^3+0,1114X^4$ $X=\log(\varphi_p)$	

TABLE 2.1 – *Propriétés du Polyisobutylène, du toluène et du mélange* $(T=298\,K)$ *[51, 53, 58]*

($D\approx10^{-10}\,m^2/s$) rapportée à l'épaisseur de la solution ($0,1\,mm<e<10\,mm$). Les vitesses résultantes sont alors au maximum de l'ordre de $v=1\,cm/s$ ce qui indique que les effets de compressibilité dynamique sont totalement négligeables (nombre de Mach $v/c\ll1$, avec c la célérité du son dans le fluide) [35]. De plus, les masses volumiques des constituants de la solution étant voisines ($\rho_p=1,06\rho_s$, Tab. 2.1) et les variations de température étant faibles ($<5^o$C), la masse volumique du mélange est prise égale à celle du solvant dans les équations de bilan (2.1), sauf dans le terme de poids volumique dans lequel celle-ci est linéarisée :

$$\rho=\rho_{\text{ref}}+\left(\frac{\partial\rho}{\partial\omega_s}\right)_{P_{\text{ref}},T_{\text{ref}}}(\omega_s-\omega_{s_{\text{ref}}})+\left(\frac{\partial\rho}{\partial P}\right)_{\omega_{s_{\text{ref}}},T_{\text{ref}}}(P-P_{\text{ref}})+\left(\frac{\partial\rho}{\partial T}\right)_{\omega_{s_{\text{ref}}},P_{\text{ref}}}(T-T_{\text{ref}})$$

avec P_{ref}, T_{ref} et $\omega_{s_{\text{ref}}}$ les valeurs de référence. En négligeant les variations de masse volumique avec la pression et en choisissant le solvant pur comme référence pour la concentration ($\rho_{\text{ref}}=\rho_s$), on obtient :

$$\begin{aligned}\rho &= \rho_s\left(1+\frac{1}{\rho_s}\left(\frac{\partial\rho}{\partial\omega_s}\right)_{T_{\text{ref}},P_{\text{ref}}}(\omega_s-1)+\frac{1}{\rho_s}\left(\frac{\partial\rho}{\partial T}\right)_{\omega_{s_{\text{ref}}},P_{\text{ref}}}(T-T_{\text{ref}})\right)\\ &= \rho_s\left(1-\beta_m(\omega_s-1)-\beta_T(T-T_{\text{ref}})\right)\end{aligned}$$

avec $\beta_T=-\frac{1}{\rho_s}\left(\frac{\partial\rho}{\partial T}\right)_{\omega_{s_{\text{ref}}},P_{\text{ref}}}$ le coefficient de dilatation thermique isobare et isoconcentration, $\beta_m=-\frac{1}{\rho_s}\left(\frac{\partial\rho}{\partial\omega_s}\right)_{T_{\text{ref}},P_{\text{ref}}}$ le coefficient de dilatation massique isotherme et isobare, ω_s est la fraction massique de solvant. Sous l'hypothèse d'un mélange idéal, le coefficient de dilatation massique isotherme s'exprime simplement sous la forme $\beta_m=\rho_p/\rho_s-1$.

En négligeant la contribution du flux de chaleur de Dufour [30], l'équation de l'énergie (2.1c) peut

se réécrire sous la forme

$$c_p\left(\frac{\partial \rho T}{\partial t}+\nabla.\left(\rho\overrightarrow{v}T\right)\right)=-\nabla.\overrightarrow{q_{Cond}}-\left(\frac{\partial \ln\rho}{\partial \ln T}\right)\frac{dP}{dt}+\overline{\overline{\tau}}:\nabla\overrightarrow{v}+\sum_{i\in\{s,p\}}\overrightarrow{j_i}\nabla h_i$$

L'évaluation du nombre d'Eckert $Ec = v^2/C_p\Delta T$, qui mesure le rapport entre l'énergie cinétique et la variation d'enthalpie, montre que celui-ci est très petit devant l'unité : la puissance thermique engendrée par la dissipation visqueuse $\overline{\overline{\tau}}:\nabla\overrightarrow{v}$ et la puissance des forces de pression $-\left(\frac{\partial \ln\rho}{\partial \ln T}\right)\frac{DP}{Dt}$ sont donc négligeables. Il en est de même pour le transport de l'enthalpie par les flux massiques $\overrightarrow{j_i}$ dont l'ordre de grandeur est environ 500 fois plus faible que le flux de chaleur de conduction $\overrightarrow{q_{Cond}}$ dans la solution.

Doumenc et al. [20] ont montré que dans le cas d'une solution PIB/Toluène, l'effet Soret est 100 fois plus faible que la diffusion de matière. La contribution de thermodiffusion est donc négligée : $\overrightarrow{j_i} = -\rho D\nabla\omega_i$.

La conductivité thermique du mélange k apparaissant dans la loi de Fourier $\overrightarrow{q_{Cond}} = -k\nabla T$ s'obtient à l'aide de l'équation 2.16 de Filippov [24].

$$k = \omega_s k_s + \omega_p k_p - 0.72\omega_s\omega_p\left|k_p - k_s\right| \tag{2.16}$$

La fraction volumique de solvant φ_s ne peut descendre en dessous de 40% ce qui permet de maintenir une activité supérieure à 0,9 ; le flux d'évaporation doit être indépendant de la concentration en solvant ; si φ_s est inférieure à 0,4, le modèle d'évaporation n'est plus valable. Pour la solution étudiée (voir Tab. 2.1), les conductivités thermiques des constituants diffèrent de seulement 10%. La conductivité du mélange ne varie au plus que de $4,5\%$: la conductivité de la solution est donc choisie constante et égale à celle du solvant, $k = k_s$. Pour l'expression de la capacité calorifique massique à pression constante du mélange, Teja [50] le définit comme étant la somme de celles des corps purs pondérés par les fractions massiques respectives. Compte tenu des valeurs de c_{p_s}, c_{p_p}, l'erreur commise en approximant la capacité calorifique à pression constante à celle du solvant ne dépasse pas $3,6\%$ pour $\omega_s \geq 0,38$.

Les équations et les conditions aux limites font apparaître les fractions volumique et massique du solvant. La solution étant supposée idéale, on peut écrire [21] :

$$\varphi_s = \frac{\omega_s\frac{\rho_p}{\rho_s}}{1-\omega_s\left(1-\frac{\rho_p}{\rho_s}\right)}$$

Compte tenu des valeurs numériques des masses volumiques du solvant et du polymère ainsi que des approximations réalisées précédemment, il est raisonnable de simplifier la relation précédente en identifiant directement la fraction massique à la fraction volumique : l'erreur commise dans cette approximation est au maximum de 4%. Par la suite, nous utiliserons donc l'égalité

$$\omega_s = \varphi_s \tag{2.17}$$

2.2.1.2 Modélisation de la phase gazeuse et de l'interface

Nous allons établir les approximations des conditions de saut des contraintes de part et d'autre de l'interface. Le gaz étant au repos, la contribution visqueuse du tenseur des contraintes est nulle, $\overline{\overline{\tau_g}} \equiv \overline{\overline{0}}$.

Avec l'hypothèse de gaz au repos, la relation de saut de la composante tangentielle de la contrainte (2.10) devient :

$$(\overline{\overline{\sigma_l}}.\overrightarrow{n_l}).\overrightarrow{t_i} = \nabla_t\gamma.\overrightarrow{t_i}, \qquad i = 1,2 \tag{2.18}$$

Étudions plus en détails ce qui se passe pour la composante normale (2.11). En notant Φ_s la densité de flux massique de solvant telle que

$$\Phi_s \equiv \left(\omega_{s,l}\rho_l(\overrightarrow{v_l} - \overrightarrow{v_{\text{int}}}) + \overrightarrow{j_{s,l}}\right).\overrightarrow{n_l} = \overrightarrow{j_{s,l}}.\overrightarrow{n_l}/(1-\omega_{s,l}) \tag{2.19}$$

on obtient simplement

$$(P_l - P_g) - (\overline{\overline{\tau_l}}.\overrightarrow{n_l}).\overrightarrow{n_l} = \gamma\nabla_t.\overrightarrow{n_l} + \left(\frac{1}{\rho_g} - \frac{1}{\rho_l}\right)\Phi_s^2$$

Afin de tenir compte du poids du fluide dans la zone liquide, nous introduisons la pression motrice p telle que la pression thermodynamique P s'écrive :

$$P = p - \rho g\xi$$

avec $\xi = y_{\text{int}} - \bar{y}_{\text{int}}$ la déflexion locale de l'interface par rapport à sa valeur moyenne $\bar{y}_{\text{int}}$. En notant $P_g = p_0$ la pression statique en $\xi = \bar{y}_{\text{int}}$, nous obtenons

$$(p_l - p_0 - (\rho_l - \rho_g)g\xi) - (\overline{\overline{\tau_l}}.\overrightarrow{n_l}).\overrightarrow{n_l} = \gamma\nabla_t.\overrightarrow{n_l} + \left(\frac{1}{\rho_g} - \frac{1}{\rho_l}\right)\Phi_s^2$$

En choisissant l'épaisseur du film liquide e comme référence de longueur, $\rho_l U^2$ pour la différence de pression $p_l - p_0$, $\Phi_{s,0}$ pour le flux d'évaporation, et en notant $\Delta\rho = \rho_l - \rho_g$, la relation devient :

$$\frac{\text{Pe}}{\text{Pr}}(\tilde{p}_l - p_0) - \frac{\text{Bo}}{\text{Cr}\,\text{Pe}}\tilde{\xi} - (\overline{\overline{\tilde{\tau}_l}}.\overrightarrow{n_l}).\overrightarrow{n_l} = \frac{1}{\text{Cr}\,\text{Pe}}\tilde{\nabla}.\overrightarrow{n_l} + \frac{\Delta\rho}{\rho_g}\left(\frac{\Phi_{s,0}}{\rho_l}\right)^2\frac{e}{\nu U}(\tilde{\Phi}_s)^2 \tag{2.20}$$

où $\text{Pe} = Ue/\alpha_l$ est le nombre de Péclet, avec α_l et U la diffusivité thermique et la vitesse caractéristique de la solution, $\text{Bo} = \Delta\rho g e^2/\gamma$ est le nombre de Bond, $\text{Cr} = \mu_l\alpha_l/(e\gamma)$ est le nombre de crispation et $\text{Pr} = \nu_l/\alpha_l$ est le nombre de Prandtl.

Les travaux présentés dans ce mémoire portent essentiellement sur la détermination de la transition entre les écoulements diffusifs et convectifs. Cette transition a donc lieu pour des vitesses d'écoulement de l'ordre de la vitesse de diffusion thermique ($\text{Pe} = 1$) ou massique ($\text{Pe} = \text{Le}$ avec $\text{Le} = \alpha/D$ le nombre de Lewis). Le tableau 2.2 récapitule les différents ordres de grandeur des termes de la relation (2.20), pour quelques exemples de transition diffusif/convectif.

L'ordre de grandeur du dernier terme de l'équation (2.20) (dernière colonne du tableau 2.2) montre que le terme source dû à l'évaporation est négligeable par rapport à la contrainte visqueuse engendrée par l'écoulement à la surface libre. De même, les paramètres adimensionnels Bo/Cr.Pe et 1/Cr.Pe étant généralement grands devant l'unité, la déformation de la surface et l'effet de la tension de surface peuvent être négligés. Nous adopterons donc l'hypothèse de surface plane indéformable, ce qui revient à substituer la relation (2.11) par la condition (2.21)

$$p_l - p_0 - (\overline{\overline{\tau_l}}.\overrightarrow{n_l}).\overrightarrow{n_l} = 0 \tag{2.21}$$

où $\overrightarrow{n_l}$ est confondu avec le vecteur vertical unitaire de la base canonique $\overrightarrow{e_z}$.

La vitesse d'évaporation du solvant liquide $v_{\text{evap},l}$ est proportionnelle au flux de densité massique d'évaporation Φ_s et à la masse volumique du solvant liquide pur $\rho_{s,l}$:

$$\Phi_s = \rho_{s,l}v_{\text{evap},l}$$

Pe [−]	φ_s [−]	μ_l [mPa.s]	e [mm]	U [mm/s]	$\frac{\mathrm{Pe}}{\mathrm{Pr}}$ [−]	$\frac{\mathrm{Bo}}{\mathrm{Cr\,Pe}}$ [−]	$\frac{1}{\mathrm{Cr\,Pe}}$ [−]	$\frac{\Delta\rho}{\rho_g}\left(\frac{\Phi_{s,0}}{\rho_l}\right)^2\frac{e}{\nu U}$ [−]
1	0,973	5,43	1	$9,70.10^{-2}$	$1,55.10^{-2}$	16,11	53,01	$1,76.10^{-4}$
1	0,917	145	8	$1,21.10^{-2}$	$5,78.10^{-4}$	308,82	15,88	$4,22.10^{-4}$
1	0,866	1417	20	$4,85.10^{-3}$	$5,93.10^{-5}$	493,77	4,06	$2,69.10^{-4}$
$Le = 10^{-3}$	0,9	323	0,1255	$7,97.10^{-4}$	$2,68.10^{-7}$	519,16	$1,08.10^{5}$	$4,51.10^{-5}$
$Le = 10^{-3}$	0,99	1,38	0,0112	$8,93.10^{-3}$	$6,28.10^{-5}$	86,37	$2,27.10^{6}$	$8,41.10^{-5}$
$Le = 10^{-3}$	0,999	0,62	0,0229	$4,37.10^{-3}$	$1,40.10^{-4}$	$1,65.10^{3}$	$1,03.10^{7}$	$7,82.10^{-4}$
$Le = 10^{-3}$	0,9999	0,61	0,0745	$1,34.10^{-3}$	$1,42.10^{-4}$	$5,76.10^{4}$	$3,41.10^{7}$	$8,44.10^{-3}$

TABLE 2.2 – *Exemples du poids des différents termes de l'équation* (2.20), $\Phi_{s,0} = 0,337\,g/m^2.s$

La conservation de la masse de solvant dans la phase liquide permet de mettre en relation la vitesse d'évaporation avec la vitesse de l'interface $\overrightarrow{v_{\text{int}}}$. Sous l'hypothèse d'une solution idéale, on obtient l'égalité : $\overrightarrow{v_{\text{int}}} = -v_{\text{evap},l}\overrightarrow{n_l} = -\Phi_s/\rho_{s,l}\overrightarrow{n_l}$. A l'aide de la première relation (2.6) et l'expression de la densité de flux massique de solvant $\Phi_s \equiv \overrightarrow{j_{s,l}}.\overrightarrow{n_l}/(1-\omega_{s,l})$, on obtient

$$(\overrightarrow{v_l} - \overrightarrow{v_{\text{int}}}).\overrightarrow{n_l} = \frac{\Phi_s}{\rho_l}$$

soit en utilisant $\overrightarrow{v_{\text{int}}} = -\Phi_s/\rho_{s,l}\overrightarrow{n_l}$,

$$\overrightarrow{v_l}.\overrightarrow{n_l} = \left(\frac{1}{\rho_l} - \frac{1}{\rho_{s,l}}\right)\Phi_s$$

Sous l'hypothèse que la masse volumique du mélange est approximée par celle du solvant (voir Sec. 2.2.1.1), nous obtenons simplement

$$\overrightarrow{v_l}.\overrightarrow{n_l} = 0 \tag{2.22}$$

En introduisant cette approximation dans la relation (2.21) et en remarquant que $\overrightarrow{n_l} \equiv \overrightarrow{e_y}$, alors le saut de la composante normale de la contrainte à l'interface se réduit à l'égalité

$$p_l = p_0$$

ce qui indique que l'interface est une surface libre (aucun couplage avec l'extérieur).

La condition massique à la surface libre résulte de l'expression de la densité de flux massique de solvant s'évaporant (2.19) dans laquelle Φ_s est remplacé par $\rho_{s,l}v_{\text{evap},l}$:

$$\overrightarrow{j_{s,l}}.\overrightarrow{n_l} = \rho_{s,l}(1-\omega_{s,l})v_{\text{evap},l}$$

En utilisant $\overrightarrow{j_{s,l}} = -\rho_l D\nabla\omega_{s,l}$ et $\rho_{s,l} = \rho_l$, nous trouvons la condition massique

$$-D\nabla\varphi_{s,l}.\overrightarrow{n_l} = (1-\varphi_{s,l})v_{\text{evap},l} \tag{2.23}$$

où $\omega_{s,l} = \varphi_{s,l}$ (Eq. (2.17).

Pour les conditions thermiques, nous repartons de la relation simplifiée (2.15) dans laquelle la densité de flux massique de solvant Φ_s est introduite :

$$(\overrightarrow{q_l} - \overrightarrow{q_g}).\overrightarrow{n_l} = L\Phi_s \tag{2.24}$$

En utilisant le coefficient d'échange massique moyen h_{m}, la relation (2.4) donnant la fraction massique de solvant gazeux à l'équilibre liquide/vapeur, et en négligeant la fraction de solvant à l'infini (évaporation dans un environnement ouvert), nous obtenons

$$\Phi_s(\omega_{s,l,\mathrm{int}}; T_{\mathrm{int}}) = h_{\mathrm{m}} \frac{P_s^{vs}(T_{\mathrm{int}})}{r_{s,g} T_{\mathrm{int}}} \times a_s(\varphi_{s,l,\mathrm{int}}; T_{\mathrm{int}})$$

Pour une fraction de solvant supérieure à $0,4$ et une température voisine de 20^oC, l'activité du solvant dans la phase liquide est voisine de l'unité ($a_s(\varphi_{s,l,\mathrm{int}} = 0,404; T_{\mathrm{int}} = 25^oC) = 0,924$ et $a_s(\varphi_{s,l,\mathrm{int}} = 0,407; T_{\mathrm{int}} = 15^oC) = 0,945$ [21]). Ainsi au premier ordre, l'expression de Φ_s ne dépend que de la température de l'interface. En tenant compte des faibles variations de température à l'interface de la solution (quelques degrés), l'évolution de Φ_s peut être linéarisée $\Phi_s(T) = \Phi_{s,0} + (T - T_0) \left.\frac{d\Phi_s}{dT}\right|_{T_0}$ avec T_0 la température de l'environnement gazeux loin de l'interface. La modélisation du flux de chaleur dans la phase gazeuse par un coefficient d'échange thermique h_{th} s'écrit

$$\overrightarrow{q_l}.\overrightarrow{n_l} = h_{\mathrm{th}}(T_{\mathrm{int}} - T_0) + L\left(\Phi_{s,0} + (T_{\mathrm{int}} - T_0) \left.\frac{d\Phi_s}{dT}\right|_{T_0}\right)$$

ce qui peut se mettre sous la forme :

$$\overrightarrow{q_l}.\overrightarrow{n_l} = H_{\mathrm{th}}(T_{\mathrm{int}} - T_0) + L\Phi_{s,0} \tag{2.25}$$

avec $H_{\mathrm{th}} = h_{\mathrm{th}} + L \left.\frac{d\Phi_s}{dT}\right|_{T_0}$.

2.2.2 Modèle couplé thermique/massique

Étant données ces approximations, nous pouvons définir le modèle simplifié intégrant les principaux transferts thermiques et massiques.

Pour un film fluide d'épaisseur $e(t)$, initialement au repos, contenu dans un récipient délimité inférieurement par une surface solide adiabatique S_{inf}, latéralement par des parois rigides S_{lat} conductrices de la chaleur et par une surface libre indéformable S_{sl} (Fig. 2.2), les équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement, de l'énergie et des espèces s'écrivent :

$$\nabla.\overrightarrow{v} = 0 \tag{2.26a}$$

$$\rho_s\left(\frac{\partial\overrightarrow{v}}{\partial t} + \nabla.\left(\overrightarrow{v}\otimes\overrightarrow{v}\right)\right) = -\nabla p + \nabla.\left(\mu\left(\nabla\overrightarrow{v} + (\nabla\overrightarrow{v})^T\right)\right) - \rho_s(\beta_T(T - T_0) + \beta_m(\varphi_s - \varphi_{s,init}))\overrightarrow{g} \tag{2.26b}$$

$$c_{p_s}\rho_s\left(\frac{\partial T}{\partial t} + \nabla.\left(\overrightarrow{v}T\right)\right) = k_s\nabla^2 T \tag{2.26c}$$

$$\frac{\partial\varphi_s}{\partial t} + \nabla.\left(\varphi_s\overrightarrow{v}\right) = D\nabla^2\varphi_s \tag{2.26d}$$

Ces équations sont munies des conditions aux limites

$$\forall(x,y,z)\in S_{inf},\ \begin{cases}\overrightarrow{v} = \overrightarrow{0}\\ \dfrac{\partial\varphi_s}{\partial y} = 0\\ \dfrac{\partial T}{\partial y} = 0\end{cases},\qquad \forall(x,y,z)\in S_{lat},\ \begin{cases}\overrightarrow{v} = \overrightarrow{0}\\ \dfrac{\partial\varphi_s}{\partial\overrightarrow{n}} = 0\\ -k\dfrac{\partial T}{\partial\overrightarrow{n}} = h_{\mathrm{th,lat}}(T - T_0)\end{cases} \tag{2.27a}$$

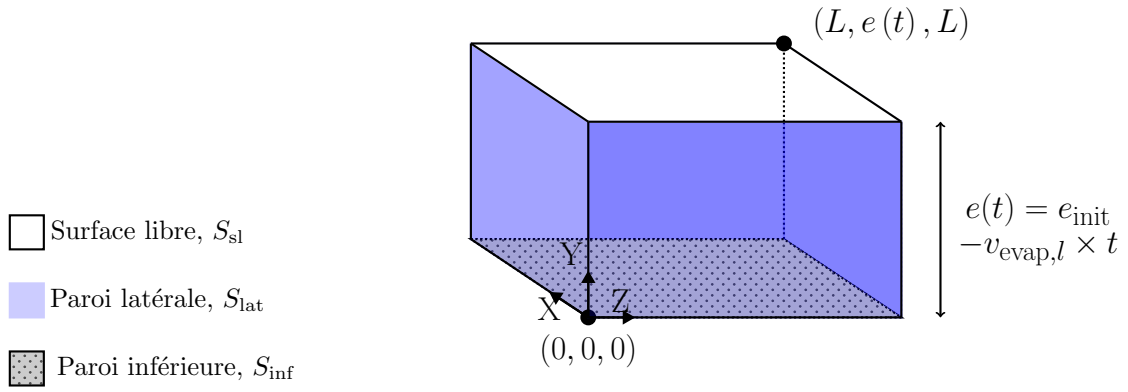


FIGURE 2.2 – *Schéma représentant le récipient contenant la solution de Polyisobutylène/Toluène à l'échelle dimensionnelle.*

$$\forall (x,y,z) \in S_{sl}, \begin{cases} \mu \dfrac{\partial v_x}{\partial y} = \dfrac{\partial \gamma}{\partial T}\dfrac{\partial T}{\partial x} + \dfrac{\partial \gamma}{\partial \varphi_s}\dfrac{\partial \varphi_s}{\partial x} \\ v_y = 0 \\ \mu \dfrac{\partial v_z}{\partial y} = \dfrac{\partial \gamma}{\partial T}\dfrac{\partial T}{\partial z} + \dfrac{\partial \gamma}{\partial \varphi_s}\dfrac{\partial \varphi_s}{\partial z} \\ -D\dfrac{\partial \varphi_s}{\partial y} = v_{\text{evap},l}(1-\varphi_s) \\ -k\dfrac{\partial T}{\partial y} = H_{\text{th}}(T_{\text{int}} - T_0) + L\Phi_{s,0} \end{cases} \tag{2.27b}$$

dans lesquelles les relations à la surface libre sont issues des équations (2.18), (2.22), (2.24) et (2.25). Le coefficient d'échange thermique $h_{\text{th,lat}}$ permet de modéliser d'éventuelles fuites thermiques à travers les parois latérales. Dans le modèle couplé, la viscosité de la solution est variable $\mu = \mu(\varphi_p)$ (Tab. 2.1) ainsi que l'épaisseur de la solution $e(t)$ qui s'écrit :

$$e(t) = e_{\text{init}} - v_{\text{evap},l} \times t \tag{2.28}$$

Nous utilisons les conditions initiales suivantes :

$$\text{Pour } t = 0,\ \forall (x,y,z) \begin{cases} \vec{v} = \vec{0} \\ \varphi_s = \varphi_{s,init} \\ T = T_0 \end{cases} \tag{2.29a}$$

2.2.3 Modèle thermique

Le nombre de Lewis étant très grand (Le $\equiv \alpha/D = 10^3$), le temps de diffusion massique est 1000 fois plus grand que celui thermique. Sur le temps de diffusion thermique Δt_{th}, il est donc raisonnable de ne pas considérer les variations en espace et en temps de la fraction volumique de solvant. De cette constatation, il résulte deux simplifications.

— La composition de la solution étant constante et uniforme, la viscosité du mélange l'est également à la valeur $\mu_{\text{init}} = \mu(\varphi_{p,\text{init}})$, avec $\varphi_{p,\text{init}}$ la fraction volumique de polymère à l'instant initial (voir Tableau 2.1).

— Sur le temps de diffusion, la variation relative de l'épaisseur de la solution $|e(t = \Delta t_{\text{th}})/e_{\text{init}} - 1|$ est approché par $(\Phi_{s,0}/\rho_{s,l}) \times (e_{\text{init}}/\alpha) \approx 4e_{\text{init}}$ avec $e_{\text{init}} = e(t = 0)$ l'épaisseur initiale de

la solution. Dans les problèmes qui nous préoccupent, les épaisseurs initiales des solutions sont comprises entre $e_{\text{init}} = 1\,\text{mm}$ et $e_{\text{init}} = 20\,\text{mm}$, ce qui implique que leur variation relative varie entre $0,4\%$ et 8%. Au vu des approximations du modèle, la variation de l'épaisseur de l'interface est donc négligée : $e(t) = e_{\text{init}}$.

Pour un film fluide d'épaisseur constante e_{init} contenu dans un récipient délimité inférieurement par une surface solide adiabatique S_{inf}, latéralement par des parois rigides S_{lat} conductrices de la chaleur et par une surface libre indéformable S_{sl} (Fig. 3.1), les équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie issues du modèle couplé thermique/massique (2.26) deviennent :

$$\nabla.\overrightarrow{v} = 0 \tag{2.30a}$$

$$\rho_s\left(\frac{\partial\overrightarrow{v}}{\partial t} + \nabla.\left(\overrightarrow{v}\otimes\overrightarrow{v}\right)\right) = -\nabla p + \mu_{\text{init}}\nabla^2\overrightarrow{v} - \rho_s(\beta_T(T-T_0))\overrightarrow{g} \tag{2.30b}$$

$$c_{p_s}\rho_s\left(\frac{\partial T}{\partial t} + \nabla.\left(\overrightarrow{v}T\right)\right) = k_s\nabla^2 T \tag{2.30c}$$

Compte tenu des hypothèses liées au modèle thermique, les conditions (2.27) se simplifient sous la forme

$$\forall(x,y,z)\in S_{inf},\ \begin{cases}\overrightarrow{v} = \overrightarrow{0}\\ \dfrac{\partial T}{\partial y} = 0\end{cases},\qquad \forall(x,y,z)\in S_{lat},\ \begin{cases}\overrightarrow{v} = \overrightarrow{0}\\ -k\dfrac{\partial T}{\partial\overrightarrow{n}} = h_{\text{th,lat}}(T-T_0)\end{cases} \tag{2.31a}$$

$$\forall(x,y,z)\in S_{sl},\ \begin{cases}\mu_{\text{init}}\dfrac{\partial v_x}{\partial y} = \dfrac{\partial\gamma}{\partial T}\dfrac{\partial T}{\partial x}\\ v_y = 0\\ \mu_{\text{init}}\dfrac{\partial v_z}{\partial y} = \dfrac{\partial\gamma}{\partial T}\dfrac{\partial T}{\partial z}\\ -k\dfrac{\partial T}{\partial y} = H_{\text{th}}(T_{\text{int}}-T_0) + L\Phi_{s,0}\end{cases} \tag{2.31b}$$

Dans le cas de l'étude thermique, nous avons effectué deux types de simulations. L'une portant sur une solution initialement au repos mais avec un échange convectif aux parois latérales, modélisé par un coefficient d'échange h_{lat}.

$$\text{Pour } t=0, h_{lat,th}\neq 0, r=0,\ \forall(x,y,z)\ \begin{cases}\overrightarrow{v} = \overrightarrow{0}\\ T = T_0\end{cases} \tag{2.32a}$$

L'autre utilisant une perturbation aléatoire initiale du champ de température et des parois latérales adiabatiques.

$$\text{Pour } t=0, h_{lat,th}=0, r\neq 0,\ \forall(x,y,z)\ \begin{cases}\overrightarrow{v} = \overrightarrow{0}\\ T = T_0 + r\times\sum_{i=1}^{N_x}\sum_{j=1}^{N_y}\sum_{k=1}^{N_z}\Pi\left(\frac{x\times N_x}{L}-i\right)\\ \Pi\left(\frac{y\times N_y}{e_{init}}-j\right)\\ \Pi\left(\frac{z\times N_z}{L}-k\right)\\ \times\Psi_i\Psi_j\Psi_k\end{cases} \tag{2.33a}$$

Le terme r représente l'amplitude de la perturbation initiale, $\{\Psi_i, i=1,\cdots,N_x\}$, $\{\Psi_j, j=1,\cdots,N_y\}$ et $\{\Psi_k, k=1,\cdots,N_z\}$ sont trois familles de variables aléatoires issues d'une loi de probabilité uniforme définie par $-0.5\leq\Psi\leq 0.5$ et Π la fonction porte telle que $\Pi = 1$ sur $[0;x/(L/N_x)]$,$[0;y/(e_{init}/N_y)]$,$[0;z//(L/N_z)]$ et $\Pi = 0$ sinon.

2.2.4 Modèle massique

Pour les temps très supérieurs au temps de diffusion thermique ($t \gg \Delta t_{\text{th}}$), le champ de température est devenu quasi stationnaire et homogène. En particulier, si le coefficient d'échange thermique sur les parois latérales est strictement nul, la température de la solution liquide tend vers $T(x,y,z,t) = T_{\text{eq}}$ qui est donnée par le flux de chaleur nul à l'interface (voir la condition à la limite thermique (2.27b)

$$T_{\text{eq}} = T_0 - \frac{L\Phi_{s,0}}{H_{\text{th}}}$$

Dans le modèle massique, on suppose que le champ thermique est à l'équilibre : l'équation de la température n'est plus résolue.

Pour un film fluide d'épaisseur $e(t)$ contenu dans un récipient délimité inférieurement par une surface solide S_{inf}, latéralement par des parois rigides S_{lat} et par une surface libre indéformable S_{sl} (Fig. 3.1), les équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et des espèces issues du modèle couplé thermique/massique (2.26) s'écrivent :

$$\nabla . \overrightarrow{v} = 0 \tag{2.34a}$$

$$\rho_s \left(\frac{\partial \overrightarrow{v}}{\partial t} + \nabla . \left(\overrightarrow{v} \otimes \overrightarrow{v} \right) \right) = -\nabla p + \nabla . \left(\mu \left(\nabla \overrightarrow{v} + (\nabla \overrightarrow{v})^T \right) \right) - \rho_s (\beta_m (\varphi_s - \varphi_{s,init})) \overrightarrow{g} \tag{2.34b}$$

$$\frac{\partial \varphi_s}{\partial t} + \nabla . \left(\varphi_s \overrightarrow{v} \right) = D \nabla^2 \varphi_s \tag{2.34c}$$

Compte tenu des hypothèses liées au modèle massique, les conditions (2.27) se simplifient sous la forme

$$\forall (x,y,z) \in S_{inf}, \begin{cases} \overrightarrow{v} = \overrightarrow{0} \\ \dfrac{\partial \varphi_s}{\partial y} = 0 \end{cases}, \qquad \forall (x,y,z) \in S_{lat}, \begin{cases} \overrightarrow{v} = \overrightarrow{0} \\ \dfrac{\partial \varphi_s}{\partial \overrightarrow{n}} = 0 \end{cases} \tag{2.35a}$$

$$\forall (x,y,z) \in S_{sl}, \begin{cases} \mu \dfrac{\partial v_x}{\partial y} = \dfrac{\partial \gamma}{\partial \varphi_s} \dfrac{\partial \varphi_s}{\partial x} \\ v_y = 0 \\ \mu \dfrac{\partial v_z}{\partial y} = \dfrac{\partial \gamma}{\partial \varphi_s} \dfrac{\partial \varphi_s}{\partial z} \\ -D \dfrac{\partial \varphi_s}{\partial y} = v_{\text{evap},l} (1 - \varphi_s) \end{cases} \tag{2.35b}$$

Pour les conditions initiales, nous utilisons une perturbation aléatoire basé sur le champ de fraction volumique.

$$\text{Pour } t = 0,\ \forall (x,y,z) \begin{cases} \overrightarrow{v} = \overrightarrow{0} \\ \varphi_s = \varphi_{s,init} + r \times \sum_{i=1}^{N_x} \sum_{j=1}^{N_y} \sum_{k=1}^{N_z} \Pi \left(\frac{x \times N_x}{L} - i \right) \\ \Pi \left(\frac{y \times N_y}{e_{init}} - j \right) \\ \Pi \left(\frac{z \times N_z}{L} - k \right) \\ \times \Psi_i \Psi_j \Psi_k \end{cases} \tag{2.36a}$$

2.3 Formalisme adimensionnel

Nous présentons dans cette partie l'adimensionnement des équations des différents modèles physiques présentés précédemment.

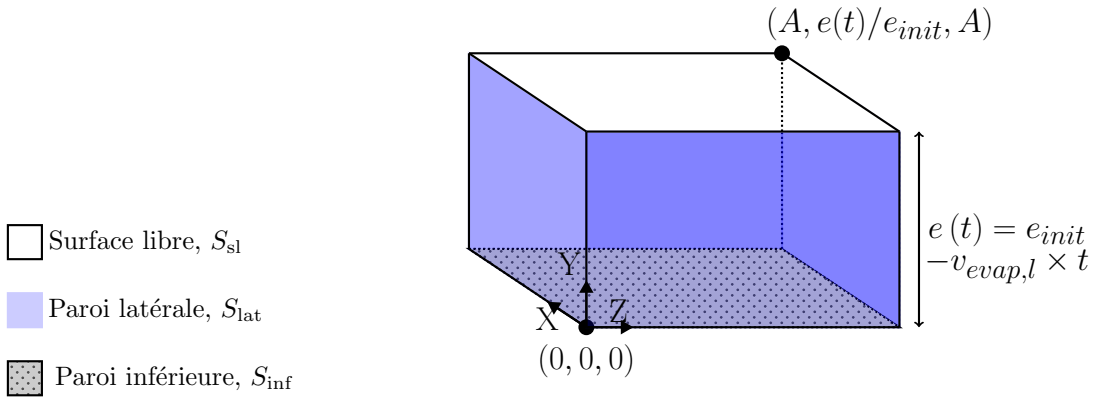


FIGURE 2.3 – *Schéma représentant le récipient contenant la solution de Polyisobutylène/Toluène à l'échelle adimensionnelle.*

Paramètres adimensionnels	
Allongement géométrique	$A = \frac{L}{e_{init}}$
Péclet d'interface	$Pe_{int} = \frac{v_{evap}\ e_{init}}{D}$
Schmidt	$Sc = \frac{\mu_{init}}{\rho D}$
Rayleigh thermique	$Ra_{th} = \frac{g\beta_T \Delta T e_{init}^3}{\nu\alpha}$
Rayleigh massique	$Ra_{sol} = \frac{\rho g \beta_m \Delta\varphi e_{init}^3}{\mu_{init} D}$
Prandtl	$Pr = \frac{\nu}{\alpha}$
Biot d'évaporation	$Bi_{evap} = \frac{H_{th} e_{init}}{k}$
Biot latéral	$Bi_{lat} = \frac{h_{lat} e_{init}}{k}$
Marangoni thermique	$Ma_{th} = \frac{-\frac{\partial\gamma}{\partial T} e_{init} \Delta T}{\mu_{init}\alpha}$
Marangoni massique	$Ma_{sol} = \frac{-\frac{\partial\gamma}{\partial\varphi_s} e_{init} \Delta\varphi}{\mu_{init} D}$

TABLE 2.3 – *Liste des paramètres adimensionnels*

2.3.1 Modèle couplé thermique/massique

Pour étudier l'écoulement convectif thermique et massique sur les temps longs, nous choisissons comme échelle de longueur l'épaisseur initiale du film fluide e_{init} et comme échelle de temps le rapport e_{init}^2/D avec D le coefficient de diffusion massique. A partir de là, nous déduisons l'échelle de vitesse D/e_{init} et de pression $\rho_s D^2/e_{init}^2$. En adimensionnant la condition limite (2.35b) du transfert de masse, nous obtenons l'équation (2.37) et le nombre adimensionnel $Pe_{int} = v_{evap}\ e_{init}/D$ qui est le nombre de Péclet d'interface, et qui traduit le rapport des vitesses de mouvement de l'interface liquide-gaz et celle de la diffusion massique.

$$\Delta\varphi = -\left.\frac{\partial\varphi_s\left(t=0\right)}{\partial y}\right|_{y=e} e_{init} = Pe_{int}\left(1-\varphi_s\left(t=0\right)\right) \tag{2.37}$$

Pour la variation de température, on utilise $T - T_0$ (T_0 à l'instant initial) par rapport à la température initiale T_0 et celle obtenue à la fin du régime thermique ΔT, c'est à dire l'instant où la température est uniforme dans la solution [51]

$$\theta = \frac{T - T_0}{\Delta T} \tag{2.38}$$

où θ représente la température adimensionnée. La valeur de $\Delta T = L\Phi_s/H_{th}$ est obtenue à partir de l'adimensionnement de l'équation 2.25. Les valeurs numériques synthétisées dans le tableau 2.1 nous donne la valeur $\Delta T = 4.8$ K.

Pour l'équation de quantité de mouvement, on fait apparaître des nombres adimensionnels comme le nombre de Schmidt ou le nombre de Prandtl (Tab. 2.3). Nous définissons le nombre de Rayleigh massique $Ra_{\text{sol}} = Ra_{\text{th}}\ Le\ (\beta_m \Delta\varphi)/(\beta_T \Delta T)$ comme étant le rapport des effets de la Poussée d'Archimède pilotée par les transferts massiques par rapport à la diffusion de quantité de mouvement et de diffusion massique. Par raisonnement analogue, le nombre de Marangoni massique $Ma_{\text{sol}} = Ma_{\text{th}}\ Le\ ((\partial\gamma/\partial\varphi)\Delta\varphi)/((\partial\gamma/\partial T)\Delta T)$ représente le rapport entre les forces de capillarités pilotées par les effets massiques par rapport aux forces visqueuses. En ce qui concerne l'équation de l'énergie, nous avons deux variables : la température θ et la fraction massique φ_s. Dans le cas d'un mélange PIB-Toluène, Toussaint et al. [53] nous donnent les valeurs des coefficients de conductivité thermique et les coefficients calorifiques massiques. Elles sont définies dans le tableau 2.1. En utilisant les échelles massiques, nous obtenons les équations adimensionnées suivantes

$$\nabla.\overrightarrow{V} = 0 \tag{2.39a}$$

$$\frac{\partial \overrightarrow{V}}{\partial t} + \left(\overrightarrow{V}.\nabla\right)\overrightarrow{V} = -\nabla p + Sc\left[\nabla.\frac{\mu}{\mu_{\text{init}}}\left(\nabla\overrightarrow{V} + (\nabla\overrightarrow{V})^T\right)\right] - Ra_{th}\frac{Sc^2}{Pr}\theta\overrightarrow{e_y} - \frac{Ra_{sol}Sc}{\Delta\varphi}\ (\varphi_s - 1)\overrightarrow{e_y} \tag{2.39b}$$

$$\frac{\partial\theta}{\partial t} + \left(\overrightarrow{V}.\nabla\right)\theta = \frac{Sc}{Pr}\nabla^2\theta \tag{2.39c}$$

$$\frac{\partial\varphi_s}{\partial t} + \left(\overrightarrow{V}.\nabla\right)\varphi_s = \nabla^2\varphi_s \tag{2.39d}$$

Pour les conditions limites, nous obtenons :

$$\forall(X,Y,Z) \in S_{inf},\ \begin{cases} \overrightarrow{V} = 0 \\ \dfrac{\partial\varphi_s}{\partial Y} = 0 \\ \dfrac{\partial\theta}{\partial Y} = 0 \end{cases},\qquad \forall(X,Y,Z) \in S_{lat},\ \begin{cases} \overrightarrow{V} = 0 \\ \dfrac{\partial\varphi_s}{\partial\overrightarrow{n}} = 0 \\ \dfrac{\partial\theta}{\partial\overrightarrow{n}} = -Bi_{lat}\theta \end{cases} \tag{2.40a}$$

$$\forall(X,Y,Z) \in S_{sl},\ \begin{cases} \dfrac{\partial V_x}{\partial Y} = -Ma_{th}Sc\dfrac{\mu_{init}}{\mu}\dfrac{\partial\theta}{\partial X} - \dfrac{Ma_{sol}}{\Delta\varphi_s}\dfrac{\mu_{init}}{\mu}\dfrac{\partial\varphi_s}{\partial X} \\ V_y = 0 \\ \dfrac{\partial V_z}{\partial Y} = -Ma_{th}Sc\dfrac{\mu_{init}}{\mu}\dfrac{\partial\theta}{\partial Z} - \dfrac{Ma_{sol}}{\Delta\varphi_s}\dfrac{\mu_{init}}{\mu}\dfrac{\partial\varphi_s}{\partial Z} \\ \dfrac{\partial\varphi_s}{\partial Y} = -Pe_{\text{int}}(1-\varphi_s) \\ \dfrac{\partial\theta}{\partial Y} = -Bi_{evap}\ (\theta+1) \end{cases} \tag{2.40b}$$

Pour les conditions initiales, nous avons :

$$\text{Pour } t = 0,\ \forall(x,y,z)\ \begin{cases} \overrightarrow{V} = \overrightarrow{0} \\ \varphi_s = \varphi_{s,init} \\ \theta = 0 \end{cases} \tag{2.41a}$$

2.3.2 Modèle thermique

Nous utilisons l'épaisseur initiale du film fluide e_{init} comme échelle de longueur, et le rapport e^2_{init}/α l'échelle de temps avec α le coefficient de diffusion thermique. Nous obtenons les échelles de

vitesse α/e_{init} et de pression $\rho_i\alpha^2/e_{init}^2$. La masse volumique de la solution est constante et uniforme. Nous obtenons les équations adimensionnées suivantes :

$$\nabla.\overrightarrow{V} = 0 \tag{2.42a}$$

$$\frac{\partial \overrightarrow{V}}{\partial t} + \left(\overrightarrow{V}.\nabla\right)\overrightarrow{V} = -\nabla p + Pr\nabla^2\overrightarrow{V} - Ra_{th}Pr\theta\overrightarrow{e_y} \tag{2.42b}$$

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} + \left(\overrightarrow{V}.\nabla\right)\theta = \nabla^2\theta \tag{2.42c}$$

Pour les conditions limites, nous obtenons :

$$\forall(X,Y,Z) \in S_{inf},\ \begin{cases} \overrightarrow{V} = 0 \\ \dfrac{\partial\theta}{\partial Y} = 0 \end{cases},\qquad \forall(X,Y,Z) \in S_{lat},\ \begin{cases} \overrightarrow{V} = 0 \\ \dfrac{\partial\theta}{\partial\overrightarrow{n}} = -Bi_{lat}\theta \end{cases} \tag{2.43a}$$

$$\forall(X,Y,Z) \in S_{sl},\ \begin{cases} \dfrac{\partial V_x}{\partial Y} = -Ma_{th}\dfrac{\partial\theta}{\partial X} \\ V_y = 0 \\ \dfrac{\partial V_z}{\partial Y} = -Ma_{th}\dfrac{\partial\theta}{\partial Z} \\ \dfrac{\partial\theta}{\partial Y} = -Bi_{evap}\left(\theta+1\right) \end{cases} \tag{2.43b}$$

Pour les conditions initiales, nous avons :

$$\text{Pour } t=0,\ \forall(x,y,z)\ \begin{cases} \overrightarrow{V} = \overrightarrow{0} \\ \theta = 0,\ \text{si } \mathrm{h_{lat,th}} \neq 0 \text{ et } \mathrm{r} = 0 \\ \theta = r \times \sum_{i=1}^{N_x}\sum_{j=1}^{N_y}\sum_{k=1}^{N_z}\Pi\left(\frac{x}{A/N_x} - i\right) \\ \Pi\left(\frac{y}{1/N_y} - j\right) \\ \Pi\left(\frac{z}{A/N_z} - k\right) \\ \times\Psi_i\Psi_j\Psi_k,\ \text{si } \mathrm{h_{lat,th}} = 0 \text{ et } \mathrm{r} \neq 0 \end{cases} \tag{2.44a}$$

2.3.3 Modèle massique

Pour le modèle massique, nous reprenons les mêmes échelles de longueur et de temps utilisées dans le cas du modèle couplé. Nous obtenons les équations suivantes :

$$\nabla.\overrightarrow{V} = 0 \tag{2.45a}$$

$$\frac{\partial \overrightarrow{V}}{\partial t} + \left(\overrightarrow{V}.\nabla\right)\overrightarrow{V} = -\nabla p + Sc\left[\nabla.\frac{\mu}{\mu_{\text{init}}}\left(\nabla\overrightarrow{V} + (\nabla\overrightarrow{V})^T\right)\right] - Ra_{sol}Sc\varphi_s\overrightarrow{e_y} \tag{2.45b}$$

$$\frac{\partial \varphi_s}{\partial t} + \left(\overrightarrow{V}.\nabla\right)\varphi_s = \nabla^2\varphi_s \tag{2.45c}$$

Pour les conditions limites, nous avons :

$$\forall(X,Y,Z) \in S_{inf},\ \begin{cases} \overrightarrow{V} = 0 \\ \dfrac{\partial\varphi_s}{\partial Y} = 0 \end{cases},\qquad \forall(X,Y,Z) \in S_{lat},\ \begin{cases} \overrightarrow{V} = 0 \\ \dfrac{\partial\varphi_s}{\partial\overrightarrow{n}} = 0 \end{cases} \tag{2.46a}$$

$$\forall (X,Y,Z) \in S_{sl}, \begin{cases} \dfrac{\partial V_x}{\partial Y} = -\dfrac{Ma_{sol}}{\Delta\varphi_s}\dfrac{\mu_{init}}{\mu}\dfrac{\partial \varphi_s}{\partial X} \\ V_y = 0 \\ \dfrac{\partial V_z}{\partial Y} = -\dfrac{Ma_{sol}}{\Delta\varphi_s}\dfrac{\mu_{init}}{\mu}\dfrac{\partial \varphi_s}{\partial Z} \\ \dfrac{\partial \varphi_s}{\partial Y} = -Pe_{\text{int}}(1-\varphi_s) \end{cases} \tag{2.46b}$$

Pour les conditions initiales, nous avons :

$$\text{Pour } t=0,\ \forall (x,y,z) \begin{cases} \overrightarrow{V} = \overrightarrow{0} \\ \varphi_s = r \times \sum_{i=1}^{N_x}\sum_{j=1}^{N_y}\sum_{k=1}^{N_z}\Pi\left(\frac{x}{A/N_x}-i\right) \\ \Pi\left(\frac{y}{1/N_y}-j\right) \\ \Pi\left(\frac{z}{A/N_z}-k\right) \\ \times\Psi_i\Psi_j\Psi_k \end{cases} \tag{2.47a}$$

2.4 Méthodes numériques et validation du code de calcul

2.4.1 Schéma de discrétisation et algorithme de résolution

Les équations de Navier-Stokes et de l'énergie sont résolues par la méthode des volumes finis, avec une discrétisation au second ordre en espace et en temps. Les termes d'advection et de convection sont explicités par la méthode d'Adams-Bashforth tandis que les termes de diffusion visqueuse, thermique et massique sont exprimés de façon implicite. Une méthode de projection est utilisée pour découpler les inconnues de pression et de vitesse. Les systèmes linéaires issus de la discrétisation des équations sont résolus par des méthodes itératives, préconditionnées par un Bi-Gradient Conjugué Carré stabilisé. Dans le cas où la viscosité est variable, les trois composantes de la vitesse sont résolues simultanément.

Le code de calcul est écrit en Fortran 90 avec le protocole *Message Passing Interface*. Une représentation multi-domaine, avec recouvrement d'une maille, est utilisée. Les systèmes linéaires sont résolus par des algorithmes parallèles du solver HYPRE, qui utilise une méthode itérative basée sur les méthodes de Krylov [36].

2.4.1.1 Méthode Marker And Cell (MAC)

Cette méthode développée par Welch et al. [61] au laboratoire scientifique de Los Alamos permet de résoudre des problèmes d'écoulements au cours du temps de fluides incompressibles visqueux avec surface libre ou des écoulements confinés. Dans le cas d'un système bidimensionnel, le domaine est recouvert de mailles rectangulaires de dimension $\delta x \times \delta y$ et référencées par les indices i et j qui numérotent les mailles dans les directions x et y. Chaque maille contient une information concernant le champ des variables pour une position donnée de l'espace : les valeurs des champs scalaires sont contenues au centre de la maille (température, pression, fraction volumique) tandis que les composantes de la vitesse sont stockées au centre des faces orthogonales à leur direction (Fig. 2.4).

Nous définissons le maillage en fonction du nombre de mailles dans la direction verticale. Dans le cas d'un maillage régulier présentant N_y mailles verticales, nous avons $N_x = A \times N_y$ mailles dans la direction longitudinale et $N_z = A \times N_y$ dans la direction transversale. Le calcul des différents champs vectoriels se résume à $(N_x - 1) \times N_y \times N_z$ pour le cas des vitesses longitudinales v_x, $N_x \times \left(N_y - 1\right) \times N_z$ pour les vitesses verticales v_y, $N_x \times N_y \times (N_z - 1)$ pour les vitesses transversales v_z et $N_x \times N_y \times N_z$ pour les champs scalaires. Dans le cas de gradients importants (plus particulièrement au niveau de l'interface liquide-gaz), on raffine dans la zone en question en utilisant une suite géométrique

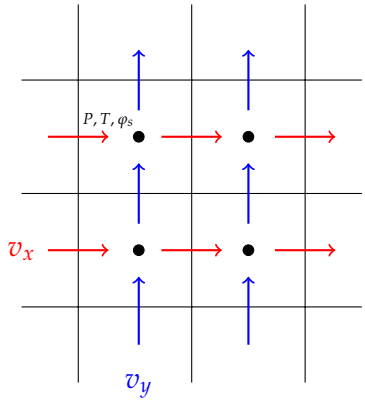


FIGURE 2.4 – *Schéma maillage Marker and Cell*

$\Delta y\,(i+1) = R \times \Delta y\,(i)$ avec R la raison de la suite et $i = 1, \ldots, (N_y - 1)$. Dans le cas d'une interface mobile, le maillage évolue au cours du temps et ce changement demande l'utilisation d'une méthode numérique comme la méthode Arbitraire Lagrangienne Eulérienne.

2.4.1.2 Méthode Arbitraire Lagrangienne Eulérienne (ALE)

Pour établir les équations de bilan, on peut utiliser un volume élémentaire de contrôle V_t, soit fixe (méthode Eulérienne), soit mobile de sorte que l'on peut suivre exactement l'ensemble des particules qui le compose (méthode Lagrangienne). La première approche est couramment utilisée en mécanique des fluides tandis que la seconde est classiquement employée en mécanique du solide [5]. La méthode ALE est une combinaison des deux approches précédentes. Elle utilise un volume de contrôle mobile qui ne suit pas les particules en mouvement : comme dans la méthode Eulérienne, nous avons des flux de matières qui traversent les frontières du volume de contrôle V_t. Si on note S_t la frontière du volume V_t, et $\overrightarrow{c}(\overrightarrow{x_{S_t}})$ la vitesse de tout point $\overrightarrow{x_{S_t}}$ de S_t (repère mobile), alors les équations de bilan couplées (2.26) s'écrivent :

$$\left.\frac{\partial}{\partial t}\right|_{\overrightarrow{x_{S_t}}} \int_{V_t} \rho dV + \int_{S_t} \rho(\overrightarrow{v} - \overrightarrow{c}(\overrightarrow{x_{S_t}})).\overrightarrow{n}\,dS = 0 \tag{2.48a}$$

$$\left.\frac{\partial}{\partial t}\right|_{\overrightarrow{x_{S_t}}} \int_{V_t} \rho\,\overrightarrow{v}\,dV + \int_{S_t} \rho\,\overrightarrow{v}(\overrightarrow{v} - \overrightarrow{c}(\overrightarrow{x_{S_t}})).\overrightarrow{n}\,dS = -\int_{S_t} p.\overrightarrow{n}\,dV + \int_{S_t} \mu\left(\nabla\overrightarrow{v} + \nabla^T\overrightarrow{v}\right).\overrightarrow{n}\,dV$$

$$-\rho\int_{V_t} (\beta_T(T - T_0) + \beta_m(\varphi_s - 1))\,\overrightarrow{g}\,dV \tag{2.48b}$$

$$\left.\frac{\partial}{\partial t}\right|_{\overrightarrow{x_{S_t}}} \int_{V_t} T dV + \int_{S_t} T(\overrightarrow{v} - \overrightarrow{c}(\overrightarrow{x_{S_t}})).\overrightarrow{n}\,dS = \alpha\int_{S_t} \nabla T.\overrightarrow{n}\,dV \tag{2.48c}$$

$$\left.\frac{\partial}{\partial t}\right|_{\overrightarrow{x_{S_t}}} \int_{V_t} \varphi_s dV + \int_{S_t} \varphi_s(\overrightarrow{v} - \overrightarrow{c}(\overrightarrow{x_{S_t}})).\overrightarrow{n}\,dS = D\int_{S_t} \nabla\varphi_s.\overrightarrow{n}\,dV \tag{2.48d}$$

où $\left.\frac{\partial}{\partial t}\right|_{\overrightarrow{x_{S_t}}}$ désigne la dérivée temporelle dans le maillage mobile [17].

Lorsque l'épaisseur du film fluide varie, il faut modifier à chaque pas de temps le maillage de sorte à mailler toujours la totalité du liquide. Dans ce cas, les volumes de contrôle mobiles sont les mailles qui se déplacent au cours du temps. Notons $V_t \equiv [X_{i-1}; X_i] \times [Y_{j-1}(t); Y_j(t)] \times [Z_{k-1}; Z_k]$ un volume

de contrôle défini pour $(i, j, k) \in [1, N_x] \times [1, N_y] \times [1, N_z]$, avec $X_i = i \times A/N_x$, et $Z_k = k \times A/N_z$. Les coordonnées des faces dans la direction verticale (y) s'écrivent :

$$Y_j(t) = \frac{j}{N_y} \times (1 - \mathrm{Pe_{int}}\, \mathrm{t})$$

2.4.2 Validation

2.4.2.1 Cavité entraînée

Nous avons un fluide incompressible et isotherme qui s'écoule dans une cavité cubique dont les surfaces S_C sont non poreuses. La paroi supérieure est en mouvement à une vitesse constante et les autres parois présentent des conditions de non-glissement. Les équations de Navier-Stokes adimensionnées s'écrivent :

$$\nabla . \overrightarrow{V} = 0 \tag{2.49a}$$

$$\frac{\partial \overrightarrow{V}}{\partial t} + \left(\overrightarrow{V}.\nabla\right) \overrightarrow{V} - \frac{1}{Re}\nabla^2 \overrightarrow{V} + \nabla p = 0 \tag{2.49b}$$

avec $\overrightarrow{V} = (u, v)$ le vecteur vitesse défini par ses composantes u et v, et p le terme de pression. Les conditions limites aux parois sont définies par :

$$\forall (X, Y = 1) \in S_C \begin{cases} \overrightarrow{V} = -u\overrightarrow{e_x} \text{ si } Y = 1 \\ \overrightarrow{V} = \overrightarrow{0} \text{ sinon} \end{cases} \tag{2.50a}$$

La condition initiale est :

$$\text{Pour } t = 0,\ \forall (X, Y, Z) \left\{ \overrightarrow{V} = \overrightarrow{0} \right. \tag{2.51a}$$

Nos résultats numériques ont été comparés avec les différents travaux de la littérature pour des simulations bidimensionnelles [8] où les valeurs numériques de références sont des extremas de vitesses situés le long d'une droite verticale au centre de la cavité et ont été obtenus avec une méthode de collocation de Chebyshev avec un polynôme de degré 160. Pour les simulations tridimensionnelle [1], les valeurs de références ont été obtenues avec une méthode analogue, un maillage composé de 96 mailles dans les directions horizontale et transversale, et 64 mailles dans la direction verticale.

Dans le cas de la modélisation bidimensionnelle, nous présentons ci-dessous les résultats de validation du code obtenu pour un maillage 395×395 régulier, un pas de temps de 5×10^{-6}, un nombre de Reynolds $Re = 1000$ et un critère d'arrêt de 1×10^{-6} basé sur la somme des erreurs de tous les champs calculés, rapportée au pas de temps. A la vue des résultats, les écarts relatifs sont

Vitesse et coordonnées	Référence Botella et Peyret [8]	Nos valeurs	Écart relatif
U_{min}	0,3886	0,3883	(0,07%)
$(0,5; Y)$	(0,5 ;0,1717)	(0,5 ;0,1715)	(0,12%)
V_{min}	-0,5270	-0,5268	(0,04%)
$(X; 0,5)$	(0,0911 ;0,5)	(0,0908 ;0,5)	(0,33%)
V_{max}	0,3769	0,3768	(0,03%)
$(X; 0,5)$	(0,8422 ;0,5)	(0,8408 ;0,5)	(0,16%)

TABLE 2.4 – *Résultats de la simulation 2D pour une cavité entraînée avec* $Re = 1000$

faibles.

Pour la modélisation tridimensionnelle, les résultats du tableau ci-dessous ont été obtenus avec un maillage $1008 \times 50 \times 1008$, raffiné en se basant sur une suite géométrique (voir Section 2.4.1.1) avec une raison de 0.95 au niveau de la paroi en mouvement, un pas de temps de 5×10^{-6} et un critère d'arrêt de 1×10^{-6}.

Vitesse et coordonnées	Référence Albensoeder et Kuhlmann [1]	Nos valeurs	Écart relatif
U_{min}	0,4350	0.4317	(0,76%)
$(X; 0,5; 0,5)$	(0,4096 ;0,5 ;0,5)	(0,4075 ;0,5 ;0,5)	(0,51%)
U_{max}	-0,2467	-0.2447	(0,81%)
$(X; 0,5; 0,5)$	(-0,3909 ;0,5 ;0,5)	(-0,3925 ;0,5 ;0,5)	(0,41%)
V_{min}	-0,2804	-0.2783	(0,75%)
$(0,5; Y; 0,5)$	(0,5 ;0,3758 ;0,5)	(0,5 ;0,3775 ;0,5)	(0,45%)
W_{min}	-0,0303	-0.0304	(0,22%)
$(0,5; 0,5; Z)$	(0,5 ;0,5 ;0,3649)	(0,5 ;0,5 ;0,3617)	(0,87%)

TABLE 2.5 – *Résultats de la simulation 3D pour une cavité entraînée avec* $Re = 1000$

2.4.2.2 Cavité différentiellement chauffée

Pour le cas de la cavité différentiellement chauffée délimité par les surfaces $S_{C'}$, l'écoulement du fluide est incompressible dans une cavité cubique imperméable dont les parois présentent des conditions de non-glissement. Parmi celles-ci, nous en avons deux, l'une en face de l'autre, où la température est imposée (une paroi chaude et une paroi froide) et les autres sont adiabatiques. Les équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie, exprimées sous une forme adimensionnelle, s'écrivent :

$$\nabla . \overrightarrow{V} = 0 \tag{2.52a}$$

$$\frac{\partial \overrightarrow{V}}{\partial t} + \left(\overrightarrow{V}.\nabla\right)\overrightarrow{V} = -\nabla p + Pr\nabla^2\overrightarrow{V} + RaPr\theta\overrightarrow{e_y} \tag{2.52b}$$

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} + \left(\overrightarrow{V}.\nabla\right)\theta = \nabla^2\theta \tag{2.52c}$$

avec les conditions aux limites suivantes :

$$\forall (X, Y, Z) \in S_{C'} \begin{cases} \overrightarrow{V} = \overrightarrow{0} \\ \theta = \frac{1}{2} \text{ si } X = \frac{1}{2} \\ \theta = -\frac{1}{2} \text{ si } X = -\frac{1}{2} \\ \frac{\partial \theta}{\partial \overrightarrow{n}} = 0 \text{ sinon} \end{cases} \tag{2.53a}$$

La condition initiale est :

$$\text{Pour } t = 0,\ \forall (X, Y, Z) \begin{cases} \overrightarrow{V} = \overrightarrow{0} \\ \theta = 0 \end{cases} \tag{2.54a}$$

Nos résultats numériques de simulation tridimensionnelle sont comparés avec ceux de Tric et al. [55], qui ont utilisé une méthode collocalisée de Chebyshev pour un maillage $81 \times 81 \times 81$. Nous présentons les résultats de validation obtenus à partir d'un maillage $100 \times 100 \times 100$ raffiné avec une suite géométrique de raison 0,95 au niveau des parois. La température est imposée et le pas de temps est de 1×10^{-6}.

Vitesse et coordonnées	Référence Tric et al. [55]	Nos valeurs	Écart relatif
U_{max}	126,97	126,82	(0,12%)
$(X; Y; Z)$	(-0,3057 ;0,2997 ;0,4365)	(-0,3077 ;0,2968 ;0,4328)	(0,65% ;0,97% ;0,85%)
V_{max}	236,72	236,88	(0,07%)
$(X; Y; Z)$	(0,4604 ;0,4299 ;0,0265)	(0,4620 ;0,4328 ;0,0261)	(0,35% ;0,67% ;1,51%)
W_{max}	25,57	25,56	(0,04%)
$(X; Y; Z)$	(0,4518 ;0,3983 ;0,4168)	(0,4532 ;0,4010 ;0,4147)	(0,31% ;0,68% ;0,50%)

TABLE 2.6 – *Résultats de la simulation 3D pour une cavité entraînée avec* $Ra = 10^6$

3 Naissance de la convection dans un modèle thermique d'évaporation

Sommaire

3.1 Description qualitative des écoulements . . . 39
3.2 Seuil de transition convectif/diffusif : définition . . . 40
3.3 Influence des paramètres numériques sur les seuils . . . 42
3.3.1 Le pas de temps . . . 43
3.3.2 Étude du maillage . . . 44
3.4 Influence de l'allongement sur les seuils convectifs/diffusifs . . . 45
3.5 Développement en espace et en temps des cellules convectives 2D . . . 47
3.5.1 Diagrammes espace-temps . . . 47
3.5.2 Vitesse de propagation des cellules convectives . . . 48
3.5.3 Développement des instabilités au cœur de la solution : effets de la viscosité et de l'allongement . . . 51
3.5.4 Évolution du nombre de cellules de convection . . . 52
3.5.5 Dépendance des seuils 2D vis-à-vis du coefficient d'échange thermique convectif latéral 55
3.5.6 Autre mode de déstabilisation : perturbations initiales aléatoires . . . 57
3.6 Développement des cellules convectives à la surface libre pour les simulations 3D . . . 60
3.6.1 Identification des cellules à la surface libre . . . 60
3.6.2 Échanges thermiques convectifs aux parois latérales . . . 63
3.6.3 Parois adiabatiques et perturbations aléatoires initiales . . . 65
3.7 Comparaison des viscosités de transition diffusion/convection avec des travaux antérieurs . . . 67

De nombreux travaux ont étudié le séchage d'une solution solvant/soluté pour des problèmes de dépôts [9, 22, 27, 28, 29, 53]. Ce procédé se traduit par l'évaporation du solvant ce qui provoque une diminution de la concentration et une baisse de la température de la solution à la surface libre. La baisse de température à l'interface engendre un transfert de chaleur du gaz environnant vers la solution qui vient partiellement, voire totalement, équilibrer les pertes dues au changement de phase. Sous l'effet de ces transferts, des instabilités convectives peuvent apparaître. Des travaux antérieurs ont montré que ces instabilités sont susceptibles d'être générées, soit par des variations de la tension de surface [40] et on parlera alors d'instabilités de type Bénard-Marangoni, soit par la poussée d'Archimède [7] pour les instabilités de type Rayleigh-Bénard.

Le régime thermique se déroule sur des temps courts du fait d'un temps de diffusion massique qui est 1000 fois plus grand que celui du thermique (voir Section 2.2.3).

La nature transitoire des transferts thermiques dans le problème d'évaporation rend la solution numérique sensible aux perturbations. En l'absence d'un contrôle explicite de ces perturbations, ce sont les erreurs issues du schéma numérique (discrétisations, solveur, erreurs numériques ...) qui sont susceptibles de déclencher la convection. Afin de s'affranchir des erreurs numériques, des travaux ont été menés en appliquant une perturbation au champ initial thermique ou dynamique [19, 51, 58]. Il a été montré que les seuils de transition entre une solution diffusive et un écoulement convectif sont relativement peu sensibles à l'intensité et à la forme de la perturbation initiale.

A la différence des travaux précédents, nous allons déstabiliser la solution en perturbant les conditions aux limites, à l'aide d'échanges convectifs au niveau des parois latérales du récipient. Ces échanges convectifs sont modélisés par un coefficient d'échange global h_{lat} qui caractérise le rapport entre le flux de chaleur transmis dans le fluide, en fonction de la différence des températures entre le liquide à la paroi et l'environnement gazeux. L'écriture adimensionnelle fait apparaître le nombre de Biot latéral, $Bi_{lat} = h_{lat} e_{init}/k$, qui mesure le rapport entre le flux de chaleur échangé par convection avec l'extérieur, et le flux de conduction dans la solution (Fig. 3.1). La perturbation se propage des

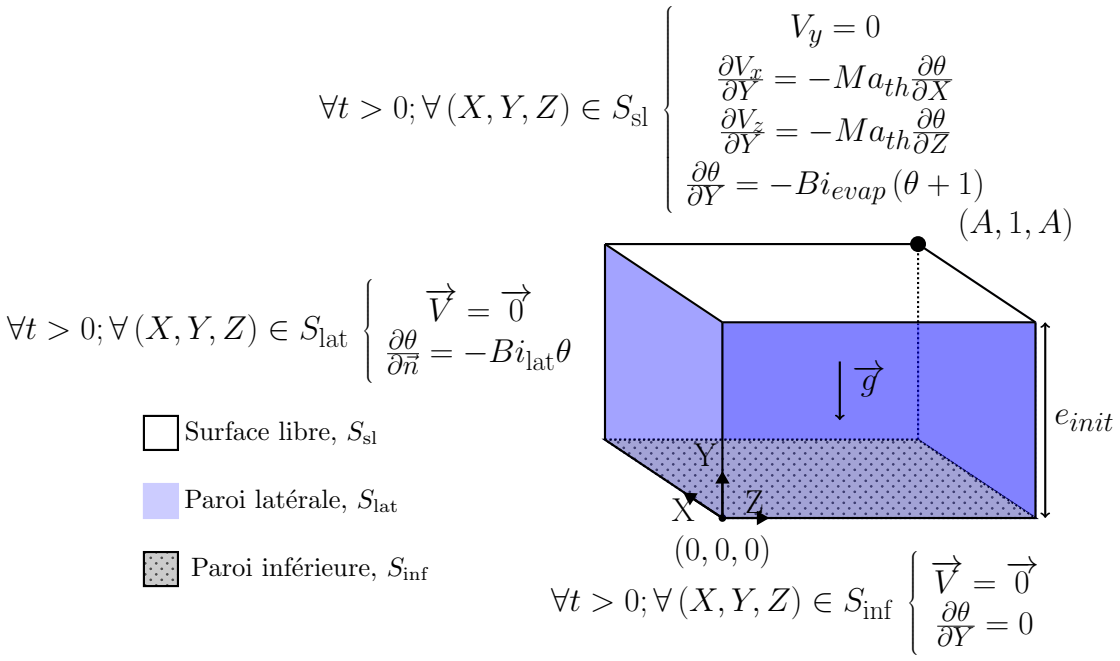


FIGURE 3.1 – *Schéma du dispositif pour une simulation thermique 3D*

parois latérales vers le centre du dispositif où elle déstabilise la solution sous certaines conditions d'épaisseur (e_{init}), de viscosité (μ_{init}) et de rapport d'allongement (A). Nous nous sommes intéressés à trois épaisseurs de solutions fluides qui engendrent trois types d'instabilités :

1. La première épaisseur ($e_{init} = 1\,mm$) a été choisie de telle sorte que les tensions superficielles soient supérieures aux effets de la poussée d'Archimède (instabilité de type Bénard-Marangoni).
2. La seconde épaisseur ($e_{init} = 8\,mm$) correspond à une déstabilisation où les interactions entre les effets Marangoni et les effets Rayleigh sont du même ordre de grandeur (instabilité de type Rayleigh-Bénard-Marangoni).

3. Enfin la dernière épaisseur ($e_{init} = 20\,mm$) est un cas où la poussée d'Archimède est très grande devant les effets de la tension de surface (instabilité de type Rayleigh-Bénard).

L'investigation a été poussée pour des simulations tridimensionnelles (Fig. 3.1) et nous présentons l'étude du développement des cellules de convection $2D$ et $3D$ (dénombrement, longueur d'onde, développement au cours du temps).

Bien que nous étudiions un mélange de PIB/toluène et que nous choisissions de travailler avec les grandeurs physiques (viscosité, épaisseur et allongement du film fluide), il est toujours utile de remonter aux paramètres adimensionnels du problème pour évaluer les équilibres et les termes dominants. Le tableau 3.1 donne les expressions des nombres de Rayleigh, Marangoni, Prandtl et Biot

$[e_{init}] = mm$, $[\mu] = mPa.s$	Ma	Ra	Pr	Bi_{evap}	Bi_{lat}
Relations	$5850\, e_{init}/\mu_{init}$	$451\, e_{init}^3/\mu_{init}$	$12\, \mu_{init}$	$0,2\, e_{init}$	$0,07 e_{init}$ $h_{lat} = 10 W.m^{-2}.K^{-1}$

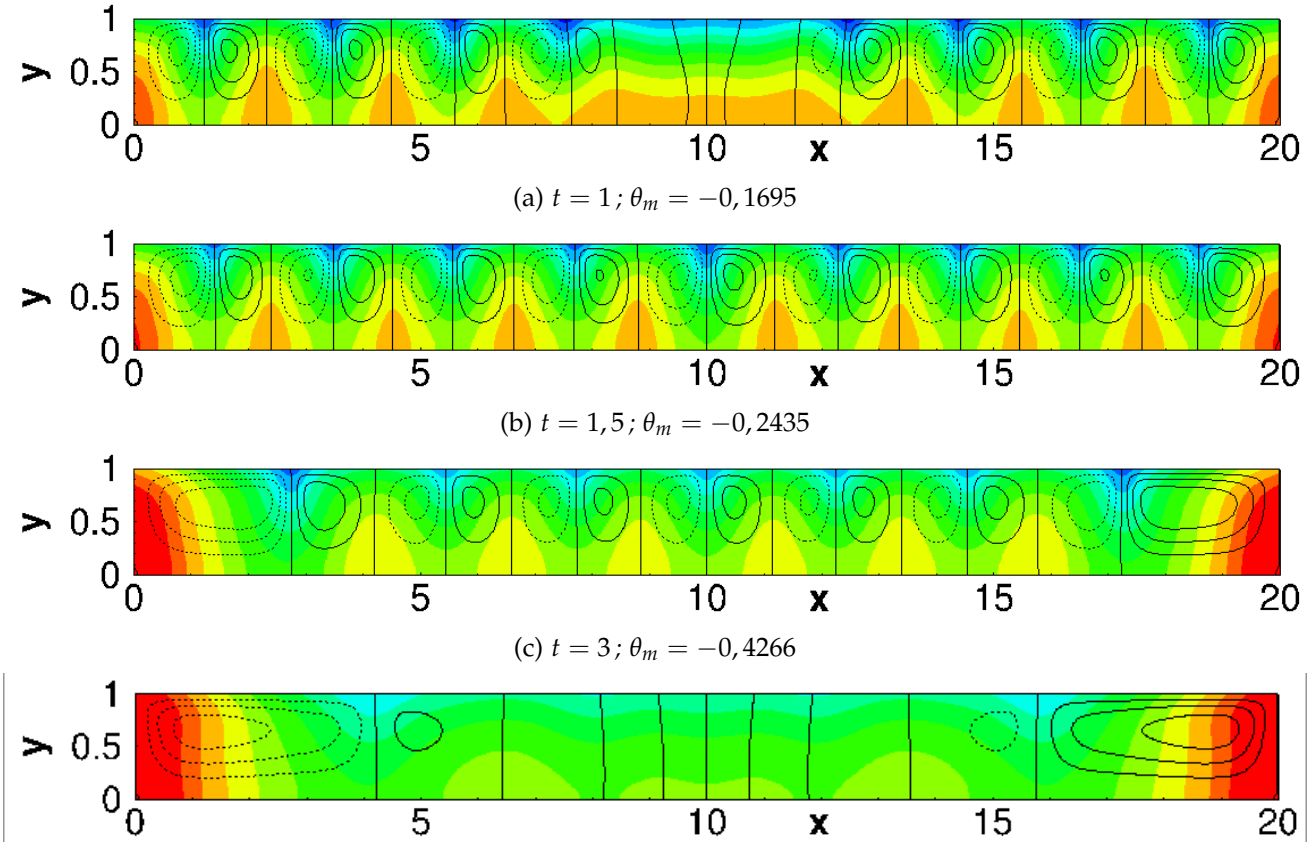
Table 3.1 – *Relation entre les paramètres physiques et les nombres adimensionnels [57]*

en fonction de l'épaisseur du film liquide e_{init} et de la viscosité de la solution exprimés respectivement en mm et $mPa.s$. Alors que fixer une épaisseur de film pour la solution ne pose aucune difficulté expérimentale, la question de l'imposition arbitraire de la viscosité est plus délicate. Or, comme la viscosité est celle d'un mélange PIB/toluène, il est également toujours possible de changer les fractions volumiques du solvant de sorte à obtenir la viscosité souhaitée. Cependant, comme mentionné dans le chapitre 2, la viscosité doit tout de même être bornée, d'une part par celle du solvant pur ($\mu_{init} = 0,59\, mPa.s$) [2], et d'autre part par la viscosité de la solution composée d'une fraction volumique de solvant de 40% ($\mu_{init} = 2,71 \times 10^5\, Pa.s$).

3.1 Description qualitative des écoulements

Pour un rapport de forme A du récipient et une épaisseur du film fluide e_{init}, il est possible de choisir une viscosité μ_{init} telle que des écoulements convectifs naissent dans la solution liquide. Dans cette section, nous allons donner deux illustrations d'évolution de l'écoulement au cours du temps, l'une pour une simulation bidimensionnelle et la seconde pour un problème tridimensionnel.

La figure 3.2 illustre pour un écoulement 2D l'évolution des fluctuations du champ de température autour de la valeur moyenne $\theta_m(t)$ ainsi que celle des lignes de courant pour $e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$ et $A = 20$. Sur les temps courts ($t \leq 1$, Fig. 3.2a), la convection engendrée par



(a) $t = 1\,;\,\theta_m = -0,1695$

(b) $t = 1,5\,;\,\theta_m = -0,2435$

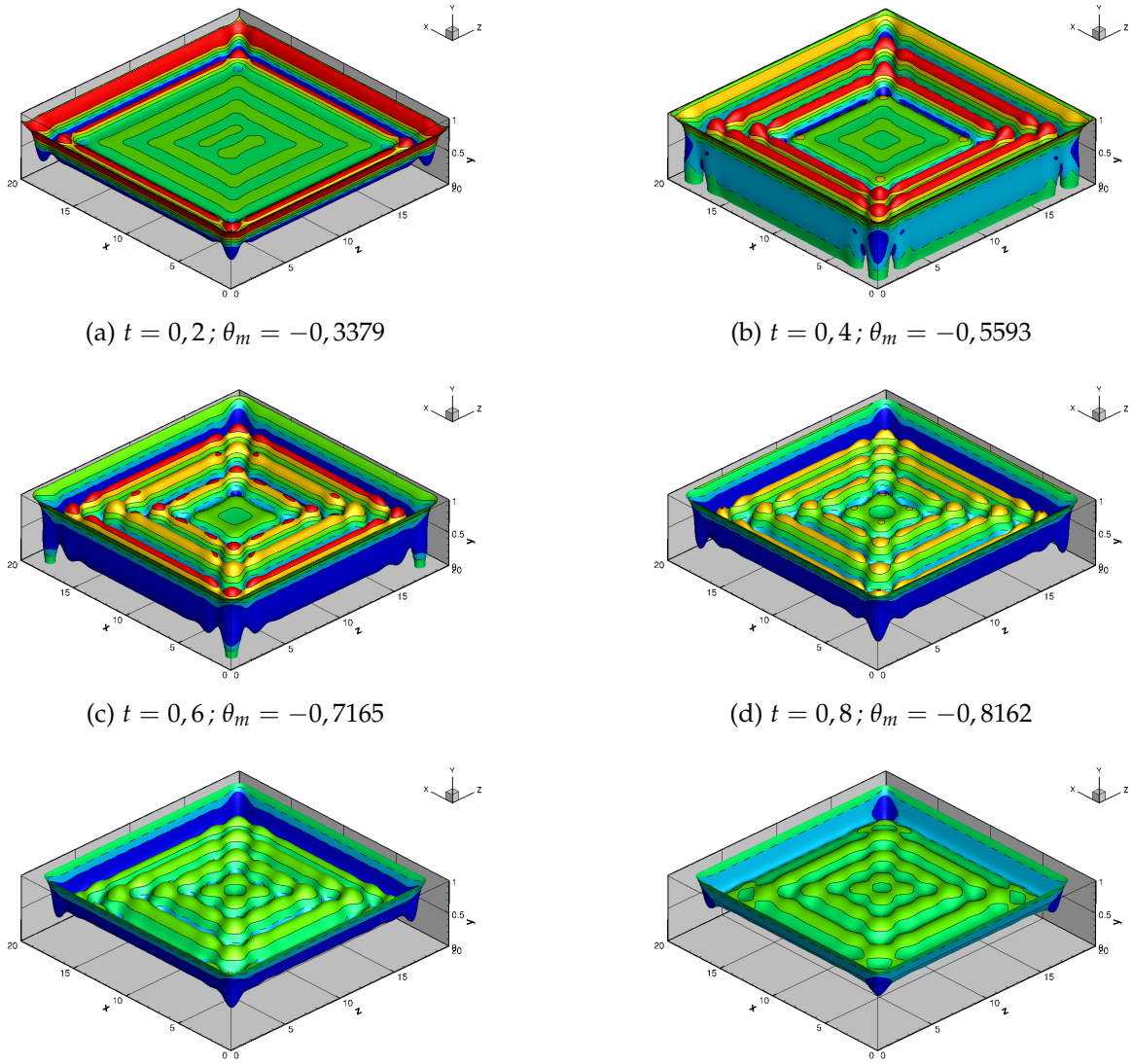
(c) $t = 3\,;\,\theta_m = -0,4266$

(d) $t = 6\,;\,\theta_m = -0,6652$

Figure 3.2 – *Fluctuations du champ de température autour de la température moyenne $\theta_m(t)$ (Champs colorés), et lignes de courant ψ. Les échelles de la température et des lignes de courant sont comprises respectivement dans l'intervalle $[-0,06; 0,04]$ et $[-2; 2]$.*

les transferts thermiques aux parois latérales se propage dans l'écoulement mais le cœur du film liquide reste essentiellement diffusif. Les cellules convectives envahissent ensuite l'ensemble du fluide ($t = 1,5$, Fig. 3.2b) puis leur intensité finit par décroître au cours du temps ($t = 3$, Fig. 3.2c) avant de retrouver un régime quasi-diffusif et homogène au centre du film liquide ($t = 6$, Fig. 3.2d). Comme le montrent les lignes de courant tracées sur le champ thermique, la température est très fortement advectée par l'écoulement ce qui s'explique aisément par la valeur élevée du nombre de Prandtl $Pr = 39$ (voir tab. 3.1).

Un exemple de l'évolution tridimensionnelle de l'écoulement et des transferts thermiques est donné sur la figure 3.3 pour $e_{init} = 20\,mm$ et $\mu_{init} = 1390\,mPa.s$. Comme dans le cas bidimensionnel, l'advection du champ thermique est très fortement corrélée à la composante verticale de vitesse



(a) $t = 0,2\,;\ \theta_m = -0,3379$

(b) $t = 0,4\,;\ \theta_m = -0,5593$

(c) $t = 0,6\,;\ \theta_m = -0,7165$

(d) $t = 0,8\,;\ \theta_m = -0,8162$

(e) $t = 1\,;\ \theta_m = -0,8802$

(f) $t = 1,2\,;\ \theta_m = -0,9234$

FIGURE 3.3 – *Iso-surface de la température fluctuante $\theta(x,y,z,t) - \theta_m(t) = 0,01$ et iso-lignes de la composante verticale de la vitesse sur l'intervalle $[-2;2]$ ($e_{init} = 20\,mm$, $\mu_{init} = 1390\,mPa.s$, $A = 20$).*

($Pr = 16680$). Les fluctuations de températures apparaissent d'abord proches des parois latérales (fig. 3.3a), se propagent vers le centre du film liquide (Figs. 3.3b- 3.3d) avant de s'atténuer lentement sur les temps longs (Figs. 3.3e et 3.3f). Bien que l'analyse détaillée des structures est donnée en Sec. 3.6, nous pouvons déjà constater en observant les surfaces isothermes que l'écoulement se structure principalement en rouleaux parallèles aux parois, rouleaux qui sont d'autant plus petits que l'on s'éloigne des frontières.

3.2 Seuil de transition convectif/diffusif : définition

La mise en évidence de la transition entre une solution diffusive et un écoulement convectif est basée sur le rapport entre l'intensité maximale de la vitesse du fluide et la vitesse de diffusion thermique, c'est-à-dire le nombre de Péclet. Afin de s'affranchir du voisinage des parois latérales, ce nombre de Péclet n'est calculé que dans la zone centrale du film fluide, pour un cas 2D sur une longueur $2e$ (e est la distance entre le centre du récipient et le bord de la zone centrale. Dans notre

cas, $e = 1$), pour un cas 3D sur une surface carrée $(2e)^2$ et l'épaisseur du liquide e_{init}. Pour différentier l'expression de ce nombre de Péclet de l'expression générale, il sera noté Pe_c et défini par

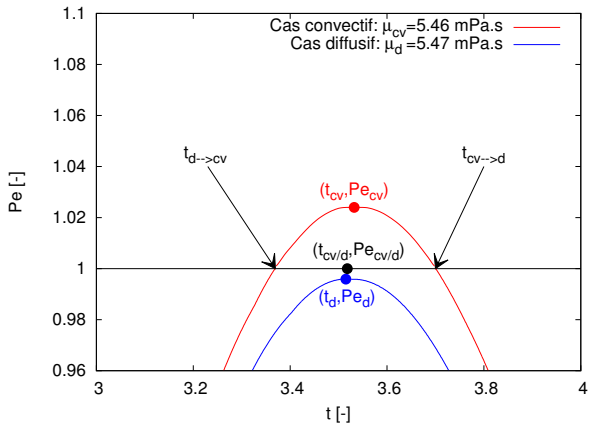
$$Pe_c(t) = \max_{\substack{(x-A/2,y,z-A/2)\in \\ [-1;1]\times[0;1]\times[-1;1]}} \|\overrightarrow{v}(x,y,z,t)\| \times e_{init}/\alpha \quad \text{ou} \quad Pe_c(t) = \max_{\substack{(x-A/2,y)\in \\ [-1;1]\times[0;1]}} \|\overrightarrow{v}(x,y,t)\| \times e_{init}/\alpha \tag{3.1}$$

selon que l'approximation est bidimensionnelle ou tridimensionnelle. Les transferts étant transitoires, le nombre de Péclet évolue au cours du temps. Pour des paramètres physiques et géométriques fixés, la solution sera qualifiée de convective si le nombre de Péclet dépasse transitoirement l'unité : $\exists t > 0$ tel que $Pe_c(t) > 1$. Dans le cas contraire, la solution sera dite diffusive : $\forall t > 0$, $Pe_c(t) < 1$. Ainsi, les paramètres de transition permettant de définir le passage d'une solution diffusive à un écoulement convectif vérifient :

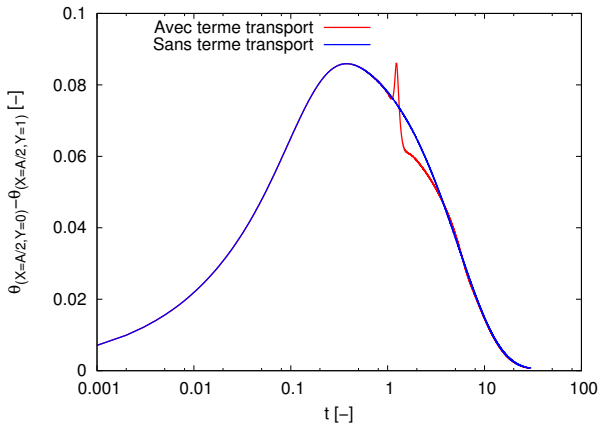
$$\exists t_{cv/d} > 0 \ / \ Pe_c(t_{cv/d}) = 1, \ \forall t \neq t_{cv/d}, \ Pe_c(t) < 1 \tag{3.2}$$

Les résultats présentés ci-dessous sont obtenus pour des simulations bidimensionnelles réalisées avec les paramètres $Bi_{lat} = 0,07$ ($h_{lat} = 10$), une épaisseur $e_{init} = 1\,mm$, un allongement $A = 20$ et aucune perturbation initiale aléatoire ($r = 0$).

D'après les courbes du nombre de Péclet de la figure 3.4a, l'écoulement est convectif pour $\mu_{init} = 5,46\,mPa.s$ et diffusif pour $\mu_{init} = 5,47\,mPa.s$. La transition convectif/diffusif correspond donc à une viscosité pour laquelle la courbe du nombre de Péclet tangente la droite $Pe_c = 1$. Pour obtenir la valeur de viscosité de transition $\mu_{cv/d}$, nous effectuons une interpolation linéaire de la viscosité en fonction de l'écart entre les maxima des courbes $Pe_c(t)$ et la droite $Pe_c = 1$. Cette interpolation repose sur un encadrement de $\mu_{cv/d}$ basé sur les viscosités obtenues pour un écoulement convectif à μ_{cv} et diffusif à μ_d. Pour que la valeur $\mu_{cv/d}$ soit précise, l'écart relatif entre μ_{cv} et μ_d n'excède pas 1%. Le temps critique d'apparition de la convection $t_{cv/d}$ est obtenu de la même façon : on relève les temps t_{cv} et t_d qui correspondent au maximum des courbes $Pe_c(t)$, dans le cas convectif et diffusif, puis on utilise une approximation linéaire. Dans l'exemple de la figure 3.4a, les valeurs interpolées donnent $\mu_{cv/d} = 5,467$ et $t_{cv/d} = 3,521$. Pour l'écoulement convectif à $\mu_{init} = 5,46\,mPa.s$ (Fig. 3.4a), nous avons



(a) *Évolution du nombre de Péclet pour deux viscosités. La courbe rouge (resp. bleue) indique un écoulement convectif (resp. diffusif).*



(b) *Évolution de la différence de température entre le fond du récipient et l'interface pour $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$. La courbe bleue est obtenue en supprimant les termes de transport des équations.*

FIGURE 3.4 – *Présentation du critère de détermination des seuils diffusif-convectif ($e_{init} = 1\,mm$, $A = 20$, $Bi_{lat} = 0,07$).*

indiqué

— le temps d'apparition de la convection $t_{d->cv}$ tel que

$$\forall t < t_{d->cv}, \quad Pe_c(t) < 1 \qquad \text{et} \qquad Pe_c(t_{d->cv}) = 1$$

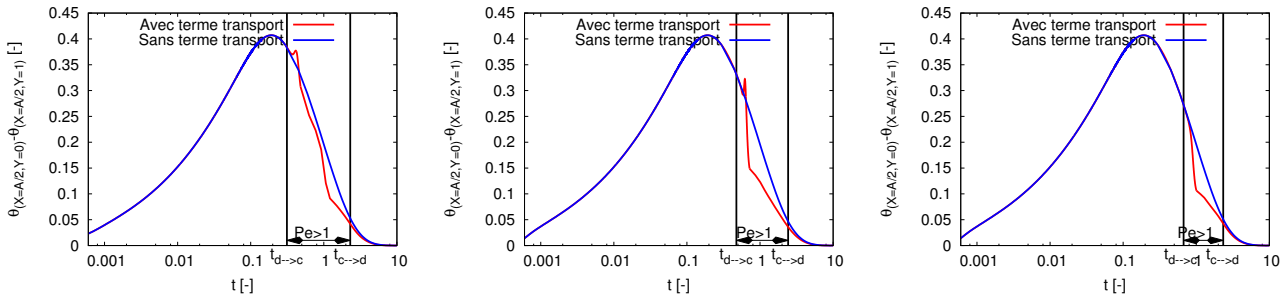
— le temps à partir duquel l'écoulement redevient diffusif $t_{cv->d}$ tel que

$$\forall t > t_{cv->d} \quad Pe_c(t) < 1 \qquad \text{et} \qquad Pe_c(t_{cv->d}) = 1$$

L'intervalle de temps pour lequel l'écoulement est donc considéré comme convectif est $[t_{d->cv}; t_{cv->d}]$.

La figure 3.4b présente, pour $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$, la différence de température réduite entre le fond et l'interface, au milieu du récipient. En l'absence des termes de convection dans les équations de bilan et pour des parois adiabatiques (courbe bleue), le refroidissement de la surface libre provoque une augmentation de l'écart de température dans le film liquide. Pour un temps adimensionnel voisin de l'unité, la diffusion thermique s'est propagée sur toute l'épaisseur : la différence des températures entre le fond et l'interface commence à diminuer. Enfin, l'énergie apportée par les transferts convectifs issus du gaz environnement, finit par équilibrer la quantité de chaleur perdue par évaporation : le champ de température dans le film devient homogène. Lorsque les échanges convectifs sont pris en compte dans les équations (courbe rouge), l'évolution de l'écart de la température reste très voisine de celle obtenue dans le cas diffusif, sauf pour des temps de l'ordre de quelques unités où la convection devient non négligeable.

Sur les figures 3.5a - 3.5c est tracé l'écart de température entre le fond et la surface libre au centre du film liquide, en l'absence et en présence des termes convectifs, pour $e_{init} = 8\,mm$, $\mu_{init} = 70\,mPa.s$ et 3 allongements. Sur cet exemple, nous constatons que les temps de déclenchement de la convection



(a) *Evolution de la température pour* $A = 20$ (b) *Evolution de la température pour* $A = 30$ (c) *Evolution de la température pour* $A = 40$

FIGURE 3.5 – *Évolution de la différence de température entre le fond du récipient et l'interface et du nombre de Péclet pour* $e_{init} = 8\,mm$ *et* $\mu_{init} = 70\,mPa.s$. *La courbe bleue est obtenue en supprimant les termes de transport des équations..*

au cœur du film liquide est d'autant plus tardif que l'allongement augmente. Ce comportement est conforme à la présentation faite dans la section 3.1 dans laquelle il est montré que la convection naît d'abord au niveau des parois latérales, puis se propage vers le centre. Ainsi, l'éloignement des parois a pour effet de retarder l'apparition de la convection thermique. Si nous superposons à ces courbes, l'intervalle de temps pour lequel l'écoulement au centre du film liquide est convectif, nous constatons que l'écart de température du problème convectif diffère de celui du cas diffusif, essentiellement lorsque $Pe_c \geq 1$. Ainsi, le critère basé sur le nombre de Péclet central Pe_c et celui construit sur l'évolution de l'écart de température par rapport à une référence purement diffusive, définissent des régimes convectifs sur des périodes temporelles qualitativement voisines.

3.3 Influence des paramètres numériques sur les seuils

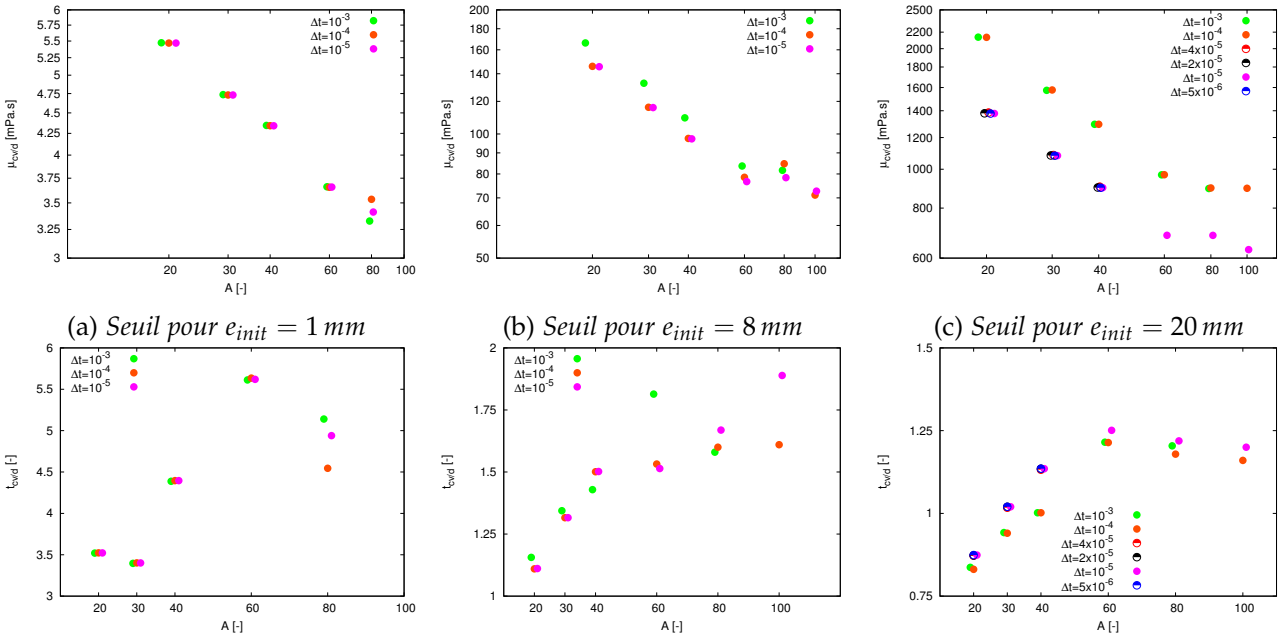
Avant de procéder à l'étude thermique du séchage, nous devons examiner l'influence du pas de temps et du maillage sur les seuils de transition diffusif/convectif. Pour cela nous ferons un encadrement de la viscosité seuil à 1% puis nous approximerons $\mu_{cv/d}$ et $t_{cv/d}$ par des interpolations

linéaires (voir section 3.2). L'analyse physique des seuils et des temps de déclenchement des instabilités convectives sera effectuée dans la section 3.4.

Des simulations bidimensionnelles sont effectuées pour 3 épaisseurs $e_{init} = 1\,mm$, $8\,mm$ et $20\,mm$, un rapport d'allongement A compris entre 20 et 100, un coefficient d'échange convectif latéral ($h_{lat} = 10\,W.m^{-2}.K^{-1}$), et sans perturbation aléatoire initiale du champ thermique ($r = 0$).

3.3.1 Le pas de temps

Dans cette partie, nous avons utilisé un maillage de $N_y = 40$ mailles dans la direction verticale et $A \times N_y$ mailles dans la direction horizontale. Le maillage est raffiné au niveau de la surface libre avec un rapport de taille de mailles de $0,95$. Le pas de temps Δt est compris entre 10^{-3} et 5×10^{-6} (Fig. 3.6).



(a) *Seuil pour* $e_{init} = 1\,mm$ (b) *Seuil pour* $e_{init} = 8\,mm$ (c) *Seuil pour* $e_{init} = 20\,mm$

(d) *Temps pour* $e_{init} = 1\,mm$ (e) *Temps pour* $e_{init} = 8\,mm$ (f) *Temps pour* $e_{init} = 20\,mm$

FIGURE 3.6 – *Influence du pas de temps Δt sur les viscosités seuils de convection/diffusion et les temps de déclenchement.*

Pour une faible épaisseur $e_{init} = 1\,mm$ et un allongement $A < 80$, les valeurs $\mu_{cv/d}$ (Fig. 3.6a) et $t_{cv/d}$ (Fig. 3.6d) sont indépendantes du pas de temps Δt. Pour $A = 80$, la viscosité seuil varie de façon non monotone autour d'une valeur $\mu_{cv/d} \approx 3,43 \pm 3\%$. Cette sensibilité est également observée sur le temps de déclenchement de l'instabilité $t_{cv/d}$. On peut montrer (voir Sec. 3.5) que l'apparition de la convection au centre du film fluide est due à la compétition entre deux instabilités. L'une est d'origine physique et est issue de la convection naturelle engendrée par l'échange thermique sur les parois latérales. La seconde est purement numérique et dépend de la précision du schéma de discrétisation, du critère d'arrêt des solveurs linéaires et de la précision des calculs. Lorsque l'allongement augmente, le temps de propagation vers le cœur de l'écoulement des instabilités convectives créées au voisinage des parois croit et peut devenir plus grand que le temps de croissance locale des perturbations numériques qui se développent dans l'ensemble du domaine fluide. Ainsi pour $A = 80$, le seuil d'instabilité est d'origine numérique : les valeurs $\mu_{cv/d}$ et $t_{cv/d}$ sont donc sensibles aux paramètres numériques, i.e. du pas de temps Δt.

Lorsque l'épaisseur du film fluide est $e_{init} = 8\,mm$, les viscosités seuils et les temps de déclenchement sont quasiment indépendants du pas de temps si celui-ci est inférieur ou égal à $\Delta t = 10^{-4}$ (Figs. 3.6b et 3.6e). Comme pour $e_{init} = 1\,mm$, on peut montrer que les instabilités d'origine numé-

rique contrôlent la déstabilisation pour $A \geq 60$. Dans ce cas, pour un pas de temps fixé, les seuils $\mu_{cv/d}$ deviennent très faiblement sensibles à l'allongement. On note également que les résultats pour un allongement donné ($A \geq 60$) sont très faiblement dispersés ce qui indique que les erreurs numériques sont quasiment indépendantes de Δt. Nous verrons dans la section suivante que le pas de temps joue un rôle bien plus prépondérant (voir Fig. 3.7b).

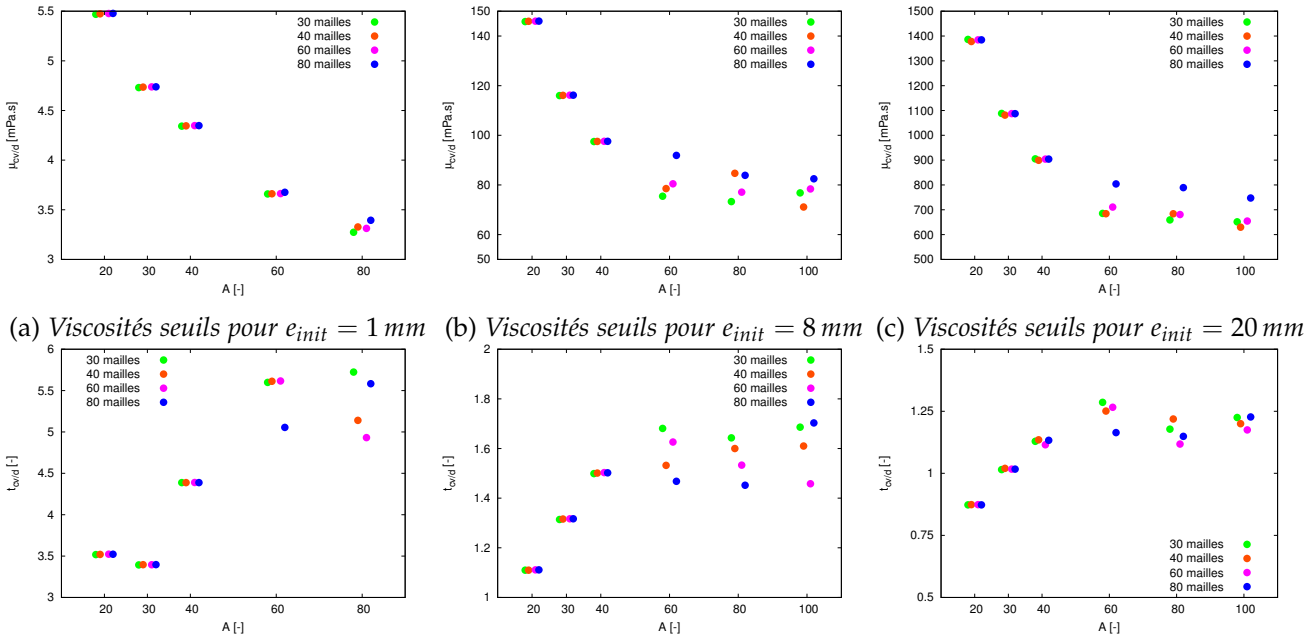
Pour l'épaisseur la plus importante, $e_{init} = 20\,mm$, nous remarquons deux familles de résultats pour les viscosités seuils selon que $\Delta t \geq 10^{-4}$ ou $\Delta t \leq 4 \times 10^{-5}$ (Fig. 3.6c). Cette observation est également valable pour les temps de déclenchement, du moins lorsque $A < 60$ (Fig. 3.6f). Comme pour $e_{init} = 8\,mm$, les seuils $\mu_{cv/d}$, mais également les temps de déclenchement $t_{cv/d}$, deviennent quasiment indépendants de l'allongement si $A \geq 60$.

A partir de ces études, nous pouvons en extraire des valeurs de pas de temps qui garantiront la convergence de nos solutions numériques avec Δt. Pour

— $e_{init} = 1$ mm, $\Delta t = 1 \times 10^{-3}$;
— $e_{init} = 8$ mm, $\Delta t = 1 \times 10^{-4}$;
— $e_{init} = 20$ mm, $\Delta t = 4 \times 10^{-5}$.

3.3.2 Étude du maillage

Sur la base des pas de temps déterminés à la section précédente, nous allons maintenant examiner l'influence du maillage sur les transitions entre les écoulements convectif/diffusif (Fig. 3.7). Les



(a) *Viscosités seuils pour* $e_{init} = 1\,mm$ (b) *Viscosités seuils pour* $e_{init} = 8\,mm$ (c) *Viscosités seuils pour* $e_{init} = 20\,mm$

(d) *Temps de déclenchement pour* $e_{init} = 1\,mm$ (e) *Temps de déclenchement pour* $e_{init} = 8\,mm$ (f) *Temps de déclenchement pour* $e_{init} = 20\,mm$

FIGURE 3.7 – *Influence du nombre de mailles verticales* N_y *sur les viscosités seuils de convection/diffusion et les temps de déclenchement.*

simulations ont été réalisées pour des maillages verticaux contenant entre $N_y = 30$ à 80 mailles verticales avec un coefficient de raffinement géométrique de $0,95$ de sorte à mieux décrire les transferts thermiques et la contrainte capillaire à la surface libre. Pour rappel, la distribution des N_x mailles dans la direction horizontale est uniforme, avec $N_x = A \times N_y$.

Pour une faible épaisseur, $e_{init} = 1\,mm$, et un allongement $A \leq 40$, les seuils de transition $\mu_{cv/d}$

et les temps de déclenchement de la convection $t_{cv/d}$ sont très peu sensibles au maillage : les écarts relatifs n'excèdent jamais 1% (Figs. 3.7a et 3.7d). Pour un allongement supérieur, $A = 60$ et surtout $A = 80$, nous observons une légère sensibilité de $\mu_{cv/d}$ et $t_{cv/d}$ avec N_y, sensibilité qui est à rapprocher des constatations effectuées lors de l'étude du pas de temps. Pour le rapport de forme de 80, la déstabilisation de l'écoulement est clairement pilotée par les instabilités numériques (voir Sec. 3.5).

Si nous considérons maintenant les deux autres épaisseurs de solution, c'est-à-dire $e_{init} = 8\,mm$ et $e_{init} = 20\,mm$, nous constatons que les viscosités (Figs. 3.7b - 3.7c) et les temps de transitions (Figs. 3.7e - 3.7f) sont quasiment constants tant que $A \leq 40$. Pour $A \geq 60$, les valeurs $\mu_{cv/d}(A)$ et $t_{cv/d}(A)$ semblent tendre vers une valeur moyenne quasi indépendante de l'allongement. Ce comportement est encore une fois la traduction d'une déstabilisation provoquée par le schéma numérique, et non pas par la convection engendrée au voisinage des parois latérales du film fluide.

Le choix du maillage doit répondre à différents critères : il doit être tel que le coût de calcul reste raisonnable mais également que les résultats des simulations soient indépendants des paramètres numériques. Cette dernière condition semble exclure l'étude de films liquides dont l'allongement est supérieur à $A = 40$. Compte tenu des résultats obtenus, nous avons donc adopté lors des simulations bidimensionnelles pour une discrétisation de l'épaisseur du film fluide avec 40 mailles et un raffinement géométrique du maillage avec une raison de $0,95$. Pour les simulations tridimensionnelles, le nombre de mailles total est $A^2 \times N_y^3$. Pour réduire le coût de calcul, nous avons légèrement réduit le nombre de mailles en choisissant $N_y = 30$. Dans ce cas et pour un allongement de $A = 40$, nous obtenons $43,2 \times 10^6$ mailles. Le tableau 3.2 récapitule les maillages et les pas de temps pour les différentes épaisseurs e_{init}, pour les simulations bi et tridimensionnelles.

Épaisseur	Pas de temps	Maillage 2D	Maillage 3D
1	1×10^{-3}	40	30
8	1×10^{-4}	40	30
20	4×10^{-5}	40	30

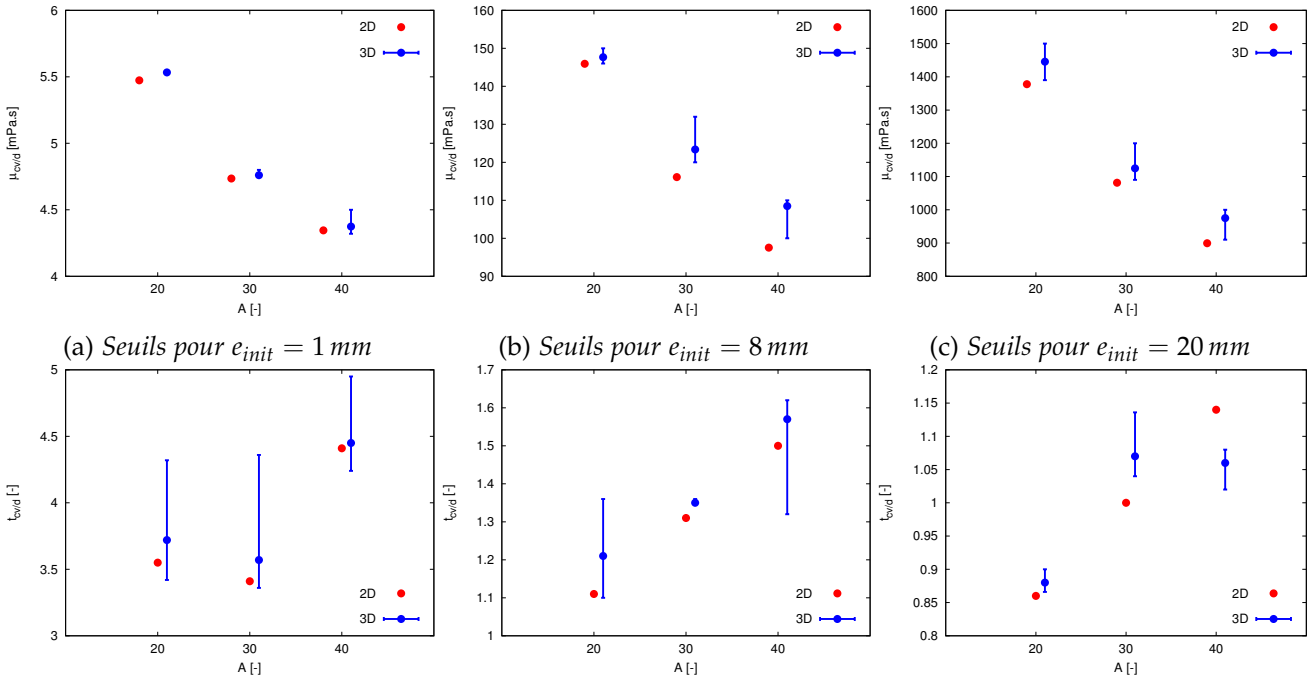
Table 3.2 – *Pas de temps et maillage des simulations numériques.*

3.4 Influence de l'allongement sur les seuils convectifs/diffusifs

Dans cette partie, le coefficient d'échange convectif est fixé, $h_{lat} = 10\,Wm^{-2}K^{-1}$, et aucune perturbation initiale du champ thermique n'est autorisée, $r = 0$. Compte tenu des propriétés de la solution, le nombre de Biot latéral s'écrit simplement $Bi_{lat} = 0,07 \times e_{init}$ avec e_{init} l'épaisseur exprimée en millimètre. Les simulations numériques sont conduites pour des films fluides bidimensionnels et tridimensionnels, avec des maillages et des pas de temps donnés par le tableau 3.2.

La figure 3.8 présente les viscosités seuils $\mu_{cv/d}$ et les temps d'apparition de la convection $t_{cv/d}$, pour des simulations bidimensionnelles et tridimensionnelles, et différents allongements. Les extrémités des barres désignent les valeurs relevées pour les solutions diffusives et convectives, et les symboles sont les valeurs interpolées. Contrairement aux simulations 2D pour lesquelles la viscosité $\mu_{cv/d}$ est encadrée à 1% près, une telle précision s'avère trop coûteuse en 3D.

Une première analyse des viscosités critiques 2D ($\mu_{cv/d}^{2D}$) et 3D ($\mu_{cv/d}^{3D}$) indique que l'approximation bidimensionnelle a pour effet de stabiliser les écoulements ($\mu_{cv/d}^{2D} < \mu_{cv/d}^{3D}$). Cet effet stabilisateur est relativement faible pour $e_{init} = 1\,mm$ ($E_{cv/d}^{2D/3D} \equiv 1 - \mu_{cv/d}^{2D}/\mu_{cv/d}^{3D} < 2\%$) et augmente pour les épaisseurs supérieures et des plus grands allongement ($E_{cv/d}^{2D/3D} \approx 11\%$ pour $e_{init} = 8\,mm$ et $E_{cv/d}^{2D/3D} \approx 9\%$ pour $e_{init} = 20\,mm$). La diminution de la viscosité seuil entre les simulations 2D et 3D est relative au mode de déstabilisation des solutions diffusives transitoires, dont l'origine est liée aux transferts



(a) *Seuils pour* $e_{init} = 1\,mm$ (b) *Seuils pour* $e_{init} = 8\,mm$ (c) *Seuils pour* $e_{init} = 20\,mm$

(d) *Temps de déclenchement pour* $e_{init} = 1\,mm$ (e) *Temps de déclenchement pour* $e_{init} = 8\,mm$ (f) *Temps de déclenchement pour* $e_{init} = 20\,mm$

FIGURE 3.8 – *Viscosités seuils et temps de déclenchement de la convection pour différents allongements A. La limite inférieure (resp. supérieure) de chacune des barres indique une solution convective (resp. diffusive), et le symbole est une valeur extrapolée de la viscosité $\mu_{cv/d}$ et du temps $t_{cv/d}$.*

thermiques le long des parois latérales du récipient. Le gradient thermique créé au niveau de ces parois est orthogonal à la gravité, ce qui induit à la fois une instabilité gravitationnelle locale (poussée d'Archimède), mais également un gradient de tension de surface. Ces faibles gradients combinés à la légère mise en mouvement du fluide, jouent ensuite le rôle de perturbateur de l'écoulement diffusif transitoire, et dans le cas où celui-ci est instable, les perturbations vont s'amplifier au cours du temps et se propager dans le film liquide. Ainsi dans le cas 3D, le doublement du nombre de parois latérales favorise naturellement la déstabilisation de la solution diffusive transitoire dans le cœur de la solution fluide.

En s'appuyant sur le rôle joué par les transferts thermiques aux parois latérales sur l'apparition de la convection, il est également possible d'expliquer l'influence de l'allongement A sur les viscosités critiques $\mu_{cv/d}$. En effet, plus les parois s'éloignent les unes des autres, plus le temps de propagation des perturbations thermiques et dynamiques induites aux frontières latérales augmente. Comme le rappelle la figure 3.4b, la différence de température dans le film liquide tend vers zéro pour les temps longs. Or celle-ci étant l'unique moteur permettant l'apparition et l'entretien d'un écoulement, sa disparition anéantit toute amplification ou propagation des perturbations issues des parois latérales. Pour observer un écoulement convectif dans le cœur du film liquide, il faut donc

— soit augmenter la vitesse de propagation des perturbations,
— soit accroître l'amplitude des perturbations au voisinage des frontières latérales pour augmenter le nombre de Péclet.

Alors que le comportement de la vitesse de propagation est difficile à prévoir, il est évident que l'augmentation des nombres de Rayleigh et Marangoni jouera sur l'intensité des gradients et des vitesses du fluide. Ainsi l'éloignement des parois implique une diminution de la viscosité $\mu_{cv/d}$ de la solution. Cette diminution est d'autant plus prononcée que l'épaississement du film fluide augmente : pour les allongements $A = 20$ et 40 et des solutions 3D, une réduction du seuil de l'ordre de 23%, 30% et 40% est visible pour $e_{init} = 1\,mm$, $8\,mm$ et $20\,mm$. Ce comportement semble indiquer

que la déstabilisation contrôlée par des inhomogénéités de densité (grandes épaisseurs) est moins *efficace* que lorsque les effets capillaires dominent (petites épaisseurs).

L'étude des temps de déclenchement $t_{cv/d}$ est relativement délicate à interpréter. Nous constatons d'abord que les valeurs issues des simulations bidimensionnelles $t^{2D}_{cv/d}$ sont généralement légèrement inférieures à celles obtenues sous l'approximation tridimensionnelle $t^{3D}_{cv/d}$, au maximum de 10%. L'explication de ce comportement semble liée aux différences de viscosités entre $\mu^{2D}_{cv/d}$ et $\mu^{3D}_{cv/d}$. Comme cela sera montré par la suite dans la section 3.5.3, plus la viscosité diminue, plus la vitesse de propagation des perturbations engendrées aux parois latérales augmente. Ainsi pour un allongement donné A, la diminution de la viscosité entraîne une déstabilisation plus précoce.

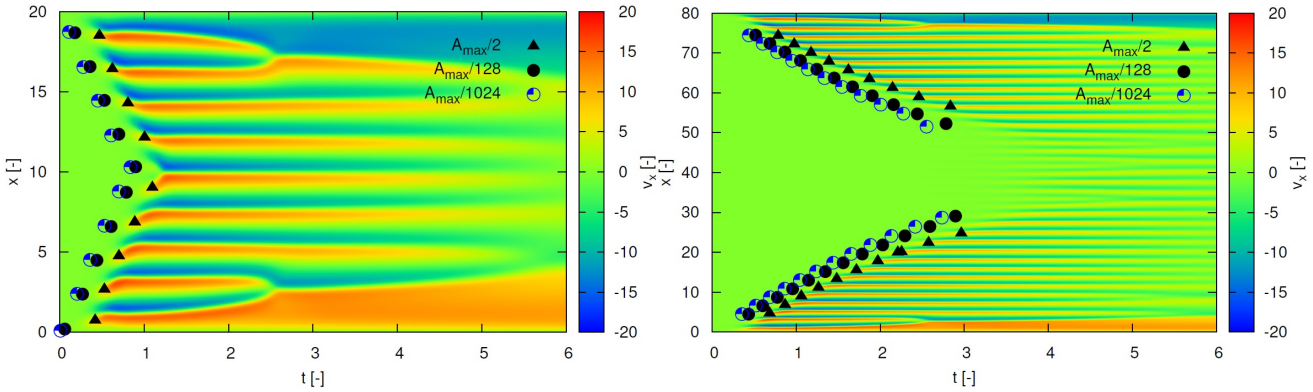
Si l'affirmation précédente "la diminution de la viscosité entraîne une déstabilisation plus précoce" est acceptée, cela pourrait suggérer que les temps de déclenchement $t_{cv/d}$ devraient croître avec l'augmentation de l'allongement (diminution de $\mu_{cv/d}$) ! Or le comportement des points $t_{cv/d}(A)$ indique plutôt un décalage du temps de déclenchement de la convection vers des valeurs plus élevées, ce qui parait en contradiction avec l'assertion précédente. La raison de ce désaccord apparent réside dans le fait que, l'allongement augmentant, le temps de parcours des perturbations induites le long des parois latérales s'accroît beaucoup plus que n'augmentent les vitesses de propagation.

3.5 Développement en espace et en temps des cellules convectives 2D

3.5.1 Diagrammes espace-temps

Pour étudier le développement des cellules convectives dans le film fluide bidimensionnel, nous relevons la composante longitudinale de la vitesse (composante verticale nulle) au niveau de l'interface libre en fonction du temps.

La figure 3.9 présente pour $e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$ et deux allongements, la propagation



(a) $A = 20$ (b) $A = 80$

Figure 3.9 – *Diagrammes espace-temps de vitesse à la surface libre pour* $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$

des cellules convectives dans l'espace et le temps. Ces diagrammes espace-temps se composent d'une succession de bandes rouges et bleues qui indiquent respectivement une vitesse algébrique positive et négative. Un couple de bandes adjacentes rouge et bleu illustre une paire de cellules contrarotatives.

Comme annoncé dans les sections précédentes, nous constatons clairement que la convection naît le long des parois latérales en $x = 0$ et $x = A$, puis se propage vers le centre de l'écoulement. Les diagrammes sont caractérisés par une symétrie de réflexion autour de $x = A/2$, ce qui indique que les évolutions et propagations des cellules convectives sont identiques à partir des deux parois du récipient. Il est également intéressant de constater que le nombre de cellules convectives se réarrange

localement pour un temps voisin de $t = 2,5$, quel que soit l'allongement. Ce changement semble occasionné par l'accroissement de la taille de chacune des deux cellules convectives qui naissent et se développent le long des parois latérales. Pour les temps longs, l'intensité de la convection s'atténue au cœur du film fluide pour tendre à nouveau vers une solution de repos, avec des vitesses nulles.

Bien que la propagation des cellules convectives apparaisse nettement sur chacun des deux diagrammes espace-temps, une différence majeure est visible pour l'allongement le plus grand. Pour $A = 80$, des cellules de convection émergent également à partir de $t \approx 4$, au centre du film fluide $x \in [\approx 30; \approx 50]$. Comme évoqué dans la section consacrée aux études du pas de temps et du maillage (Sec 3.3), ces cellules sont dues à des perturbations d'origine purement numérique et engendrent des viscosités seuils $\mu_{cv/d}$ et des temps de déclenchement de la convection $t_{cv/d}$ très dépendants des paramètres du schéma numérique et de la précision des solveurs itératifs. C'est cette sensibilité dans les paramètres numériques qui nous ont donc conduit à limiter nos études physiques à des rapports d'aspect $A \leq 40$.

3.5.2 Vitesse de propagation des cellules convectives

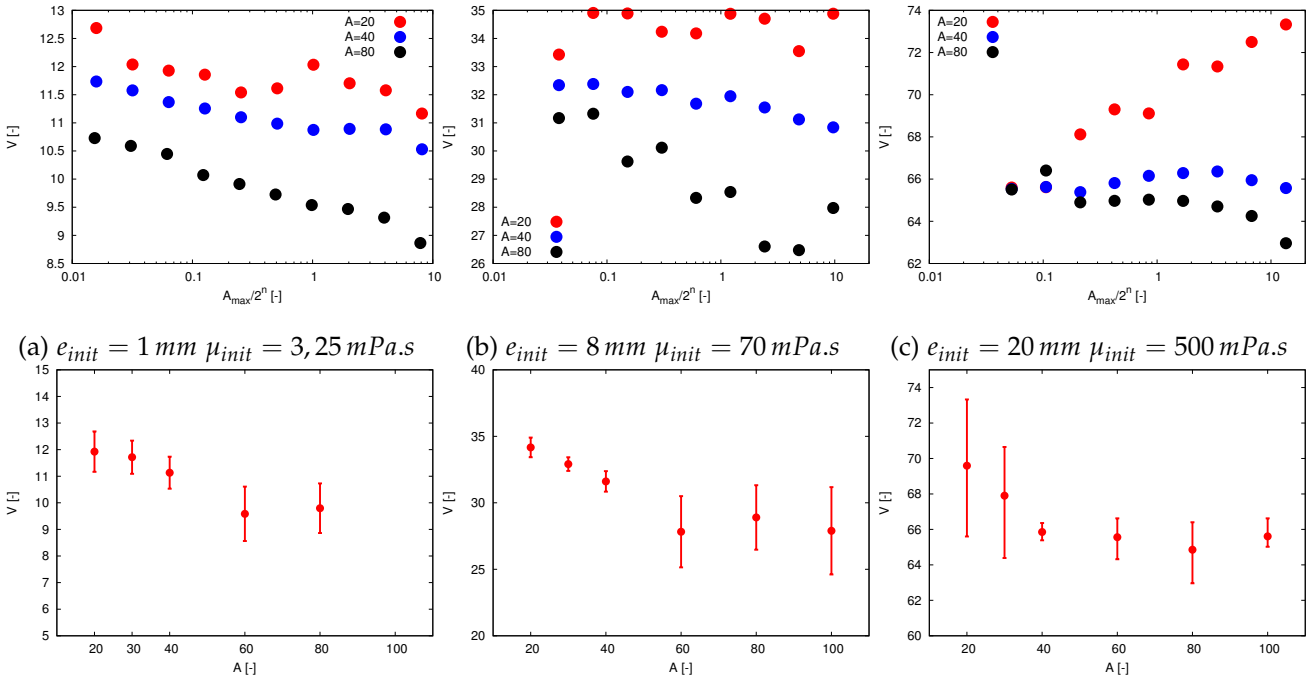
3.5.2.1 Dans l'espace des paramètres physiques (épaisseur, viscosité)

En se basant sur les diagrammes espace-temps, nous avons relevé les instants pour lesquels l'intensité maximale des cellules de convection atteint une valeur prédéfinie, à savoir $A_{\max}/2^n$ ($1 \leq n \leq 10$) avec $A_{\max}$ l'amplitude maximale de la vitesse sur l'intervalle temporel de simulation. Sur la figure 3.9 sont illustrés les temps pour trois amplitudes que sont $A_{\max}/2^1$, $A_{\max}/2^7$ et $A_{\max}/2^{10}$. On remarque que pour une intensité $A_{\max}/2^n$ donnée, les symboles s'alignent globalement selon des droites qui s'intersectent à mi-distance des parois (symétrie du problème). Pour un allongement $A = 80$, une légère courbure apparaît lorsque les cellules se rapprochent du centre. Cette déflexion s'interprète comme une augmentation de la vitesse de propagation des cellules de convection, engendrées au niveau des parois latérales. En effet, comme nous l'avons déjà décrit précédemment pour les grands allongements, des cellules convectives apparaissent aussi, localement du fait de la croissance des erreurs liées au schéma numérique. Ainsi, il est probable que l'émergence de cette convection d'origine numérique favorise la déstabilisation et vienne donc accélérer la naissance au centre du film des cellules convectives issues des frontières latérales du domaine. Dans la présentation qui suit, nous supposerons que cette faible déflexion est négligeable ce qui nous permettra d'évaluer une vitesse indépendante de l'abscisse x le long de la surface libre.

La figure 3.10 présente les vitesses de propagation des cellules convectives produites le long des parois latérales du récipient. Ce graphe a été obtenu de la façon suivante : pour une épaisseur e_{init}, un allongement A et une viscosité choisie de sorte à engendrer un écoulement convectif au centre du film liquide, l'ensemble des points du diagramme espace temps correspondant à des maxima locaux de vitesse d'amplitude $\pm A_{\max}/2^n$ a été relevé (voir Fig. 3.9), puis les valeurs ont été approximées par une fonction affine par la méthode des moindres carrés.

Les figures 3.10a–3.10c illustrent les valeurs des vitesses extraites de ces approximations, pour $A = 20$, 40 et 80. Nous constatons que les vitesses ont plutôt tendance à décroître avec l'augmentation de l'amplitude étudiée, à l'exception notable de la plus grande épaisseur $e_{init} = 20\,mm$ et un allongement $A = 20$. Si nous suivons maintenant la croissance d'une cellule au cours du temps (abscisse quasiment figée), la diminution de la vitesse V en fonction de l'intensité $A_{\max}/2^n$ indique que le taux de croissance local de la cellule convective est dépendant du temps, et décroît avec celui-ci.

Les figures 3.10d–3.10f donnent les intervalles des vitesses de propagation obtenus lorsque l'amplitude varie de $A_{\max}/2^1$ à $A_{\max}/2^{10}$, en fonction de l'allongement A. Pour chacune des épaisseurs, nous pouvons distinguer deux comportements selon que $A \lesssim 60$ et $A \gtrsim 60$. En effet, lorsque les allongements sont petits, les vitesses moyennes définies au centre de chaque segment semblent plutôt décroître avec l'augmentation de A. En revanche si $A \gtrsim 60$, ces mêmes vitesses moyennes paraissent



(a) $e_{init} = 1\,mm$ $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$ (b) $e_{init} = 8\,mm$ $\mu_{init} = 70\,mPa.s$ (c) $e_{init} = 20\,mm$ $\mu_{init} = 500\,mPa.s$

(d) $e_{init} = 1\,mm$ $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$ (e) $e_{init} = 8\,mm$ $\mu_{init} = 70\,mPa.s$ (f) $e_{init} = 20\,mm$ $\mu_{init} = 500\,mPa.s$

FIGURE 3.10 – *Évolution des vitesses en fonction des différentes amplitudes pour les différents allongements.*

être quasi constante. Ce changement de comportement s'expliquerait par l'effet de confinement latéral qui favoriserait la vitesse de développement des cellules convectives ; pour $A \gtrsim 60$, les parois latérales deviennent suffisamment éloignées pour que les cellules convectives issues des deux parois du récipient n'interagissent plus mutuellement les unes sur les autres.

Pour une épaisseur $e_{init} = 1\,mm$, une viscosité $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$ et un allongement $A = 20$, nous avons recherché, au cours du temps, la trace à la surface libre de la cellules de convection adjacente à $x = A/2$ (bande rouge visible sur le diagramme espace-temps 3.9a) et nous en avons extrait l'amplitude maximale (Fig. 3.11). D'après cette figure, on constate que pour des faibles amplitudes,

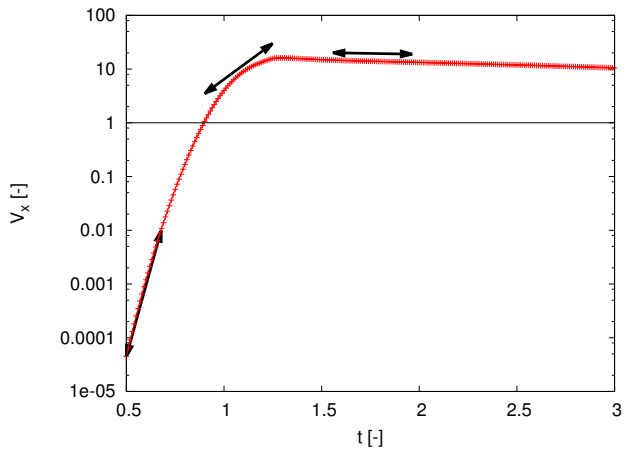


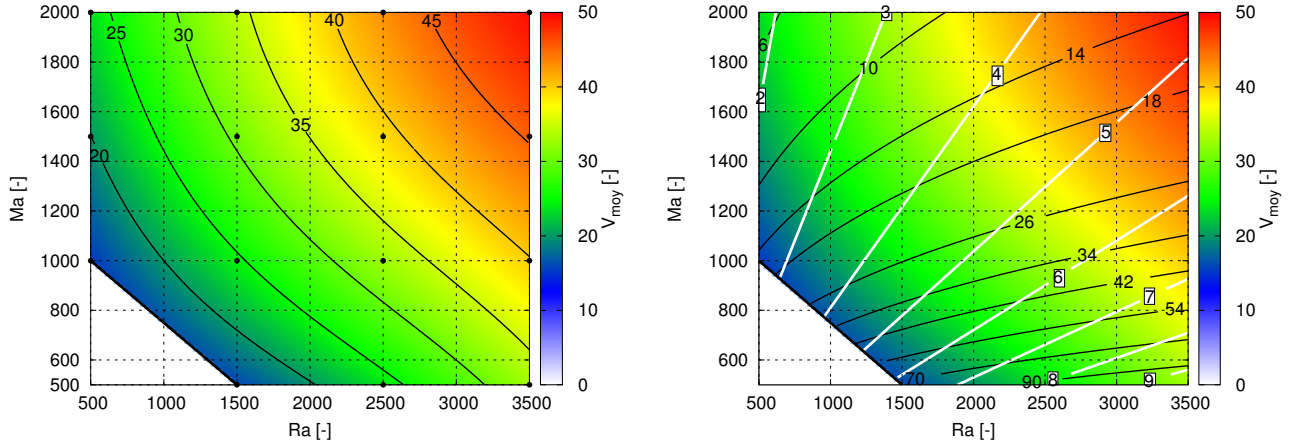
FIGURE 3.11 – *Évolution temporelle du maximum de l'intensité de la vitesse à la surface libre de la cellules située au centre du film fluide du diagramme espace-temps 3.9a ($e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$ et $A = 20$).*

c'est-à-dire dans le mode linéaire ($V_x(t) < 0.1$), l'intensité maximale de la cellule évolue légèrement moins vite qu'une exponentielle (droite en échelle log/lin). Ce comportement peut être mis en relation avec la dépendance de la vitesse de propagation des cellules convectives avec leur intensité

(Fig. 3.10a pour $A = 20$) : la vitesse de propagation V décroit avec l'augmentation de l'amplitude ($A_{max}/2^n < 1$). Ainsi, si on suppose que le maximum de la vitesse évolue à position fixée, l'arrivée plus tardive des grandes amplitudes se traduit par un taux de croissance de la cellule qui diminue légèrement avec le temps, conformément à la diminution des pentes des droites tangentes tracées sur le graphe 3.11.

3.5.2.2 Dans l'espace des paramètres adimensionnels (Rayleigh, Marangoni)

Dans cette section, nous examinons les vitesses de propagation des cellules convectives des parois vers le cœur du film liquide pour un nombre de Biot latéral fixé, $Bi_{lat} = 0,07$, en fonction des nombres de Rayleigh et de Marangoni (Fig. 3.12a). Les points indiqués sur le graphique correspondent aux



(a) *Iso-valeurs de vitesse* $V_{moy}^{anal}(Ra, Ma)$constante

(b) *Iso-valeurs de viscosité* ($\mu(Ra, Ma) =$ constante, *lignes noires) et d'épaisseur* ($e(Ra, Ma) =$ constante, *lignes blanches).*

FIGURE 3.12 – *Variation de la vitesse de propagation des cellules convectives en fonction des nombres de Rayleigh et de Marangoni* ($A = 20$, $Bi_{lat} = 0,07$).

paramètres (Ra, Ma) des simulations numériques tandis que les lignes noires sont des iso-valeurs de la fonction d'approximation bi-quadratique $V_{moy}^{anal}(Ra, Ma)$ obtenue par une méthode des moindres carrés :

$$V_{moy}^{anal}(Ra, Ma) = a_0 + a_1 Ra + a_2 Ma + a_3 RaMa + a_4 Ra^2 + a_5 Ma^2 + a_6 Ra^2 Ma^2 + a_7 RaMa^2 + a_8 Ra^2 Ma \quad (3.3)$$

avec les coefficients donnés dans le tableau 3.3. Les valeurs des vitesses issues des simulations et les écarts relatifs de la fonction d'approximation à la solution numérique sont reportés dans le tableau 3.4. Les écarts relatifs $E_{V_{moy}} = |V_{moy}^{anal}/V_{moy} - 1|$ n'excédant pas 2% des valeurs des calculs, l'approximation $V_{moy}^{anal}(Ra, Ma)$ est donc significative.

a_0	a_1	a_2	a_3	a_4	a_5	a_6	a_7	a_8
2.49	-0.002	0.008	1.73×10^{-5}	$2,38 \times 10^{-6}$	-3×10^{-7}	1.21×10^{-12}	-4.95×10^{-9}	-4.13×10^{-9}

TABLE 3.3 – *Coefficients de l'équation d'approximation* (3.3)

L'analyse de la figure 3.12a montre que la vitesse moyenne de propagation des cellules convectives est sensible aux nombres de Rayleigh et Marangoni : l'augmentation de Ra ou Ma se traduit par une accélération de la propagation de ces cellules. Compte tenu que nous travaillons avec une solution liquide particulière, du PIB/toluène, la modification des nombres de Marangoni et Rayleigh impacte également les autres paramètres adimensionnels que sont le nombre de Prandtl et le nombre Biot d'évaporation. Pour les déterminer, il faut d'abord calculer l'épaisseur et la viscosité du fluide à partir de Ma et Ra (voir 3.1, page 37), avant de reporter leur valeur numérique dans les expressions

Marangoni \ Rayleigh	500		1500		2500		3500	
	V_{moy}	$E_{V_{moy}}$	V_{moy}	$E_{V_{moy}}$	V_{moy}	$E_{V_{moy}}$	V_{moy}	$E_{V_{moy}}$
2000	23,06	1,62%	34,88	2,10%	42,56	0,54%	50,29	1,87%
1500	19,63	1,60%	31,10	1,69%	38,79	0,58%	45,90	1,35%
1000	15,17	0,37%	24,89	1,56%	33,00	0,93%	40,58	1,91%
500	-	-	16,06	0,88 %	24,20	1,64%	33,43	1,52%

TABLE 3.4 – *Vitesses de propagation des cellules convectives issues des simulations (V_{moy}) et écart relatif* $E_{V_{moy}} = |V_{moy}^{anal}/V_{moy} - 1|$ *($A = 20$, $Bi_{lat} = 0,07$). La solution numérique pour $Ra = 500$ et $Ma = 500$ est purement diffusive.*

de Pr et Bi_{evap}. D'après le tableau 3.5, nous constatons que le nombre de Prandtl est grand, compris entre 63 et 1340 : la diffusion de quantité de mouvement domine très fortement sur la diffusion thermique de 2 à 3 ordres de grandeur. Le nombre de Biot d'évaporation varie entre $Bi_{evap} = 0,36$ et environ 5 fois cette valeur, $Bi_{evap} = 1,90$.

Marangoni \ Rayleigh	500		1500		2500		3500	
	Pr	Bi_{evap}	Pr	Bi_{evap}	Pr	Bi_{evap}	Pr	Bi_{evap}
2000	63,21	0,3600	109,5	0,6240	141,3	0,8060	167,2	0,9520
1500	97,31	0,4160	168,6	0,7200	217,6	0,9300	257,5	1,1000
1000	178,8	0,5100	309,6	0,8820	399,8	1,1380	473,0	1,3480
500	-	-	875,9	1,2480	1131	1,6100	1338	1,9060

TABLE 3.5 – *Paramètres adimensionnels utilisés pour l'étude des vitesses de propagation des cellules convectives ($A = 20$, $Bi_{lat} = 0,07$).*

Superposé au champ de vitesse de propagation $V_{moy}^{anal}(Ra, Ma)$ sont tracées les lignes d'iso-épaisseur en blanc et les lignes d'iso-viscosité en noir (Fig. 3.12b). L'augmentation de l'épaisseur à viscosité fixée ou la diminution de la viscosité à épaisseur donnée conduit à un accroissement de la vitesse de propagation des cellules convectives engendrée par les parois latérales.

3.5.3 Développement des instabilités au cœur de la solution : effets de la viscosité et de l'allongement

En s'appuyant sur les analyses faites dans les sections précédentes, nous allons construire des diagrammes espaces-temps simplifiés permettant de synthétiser le rôle de la viscosité et de l'allongement sur l'apparition de la convection, dans la région centrale du film liquide.

La figure 3.13a présente deux développements schématiques d'écoulements convectifs pour deux viscosités μ_1 et $\mu_2 > \mu_1$, et un même allongement A. Comme illustré sur la figure 3.9a, l'écoulement est caractérisé par des cellules convectives, au-delà d'une région conique diffusive (solution quasi-ment au repos). Pour chacune des viscosités, cette limite est définie ici par $Pe_c(x_{d->cv}, t_{d->cv}) = 1$ et elle est représentée par une droite inclinée. Pour $t > t_{d->cv}$ et $Pe_c(x_{d->cv}, t) > 1$, l'écoulement comporte des cellules convectives : ce régime est indiqué par une zone coloriée en bleu (μ_1) ou rouge (μ_2). La région grisée modélise la zone centrale dans laquelle la transition entre une solution diffusive et un écoulement convectif est étudiée. Lorsque la droite atteint la région grisée à $t = t_{d->cv}$, le cœur du fluide transite d'une solution diffusive à un écoulement convectif : la courbe de l'évolution du nombre de Péclet associée à la région centrale devient alors supérieur à 1 (Fig. 3.13b) et on peut voir le résultat d'une simulation présentée sur la Figure 3.4a (page 41). Le temps de déclenchement de la convection au centre du film fluide est d'autant plus petit que la viscosité décroit (3.13a). Pour un temps suffisamment long, $t > t_{cv->d}$, le cœur du film fluide redevient diffusif. Compte tenu des échanges thermiques convectifs le long des parois latérales, un écoulement fluide persiste toujours,

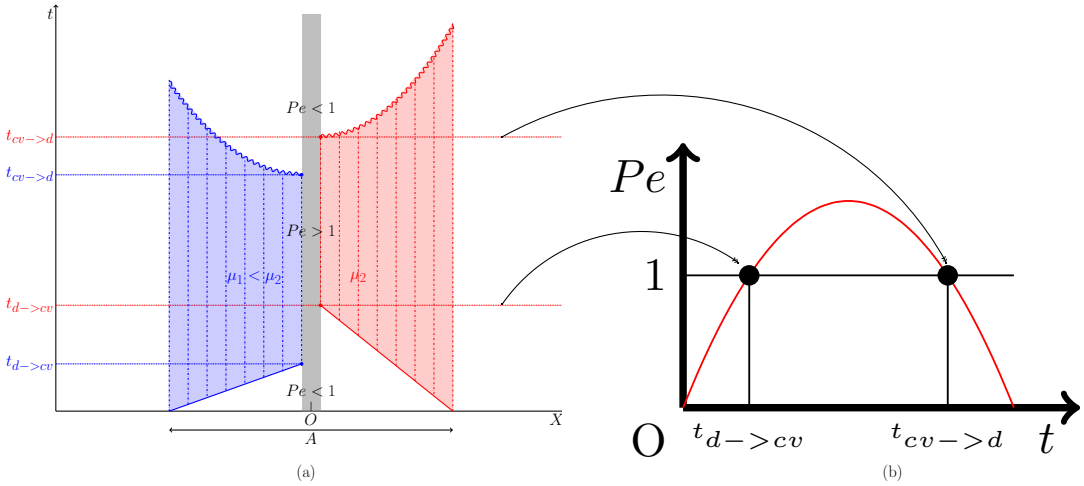


FIGURE 3.13 – *Schéma représentant l'influence de la viscosité pour un allongement donné.*

même pour $t \gg t_{cv->d}$. Il résulte donc que la limite supérieure de fin de convection, matérialisée par une courbe sinueuse croissante, augmente en s'approchant des extrémités.

La figure 3.14 montre deux développements schématiques d'écoulements convectifs pour deux allongements A_1 et $A_2 > A_1$. La représentation est similaire à celle décrite dans le paragraphe précé-

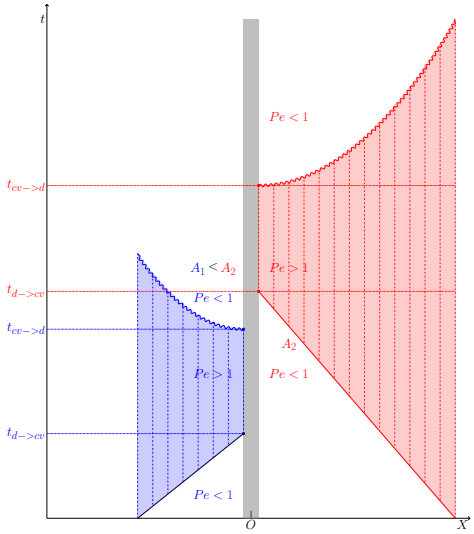


FIGURE 3.14 – *Schéma représentant l'influence de l'allongement pour une viscosité donnée.*

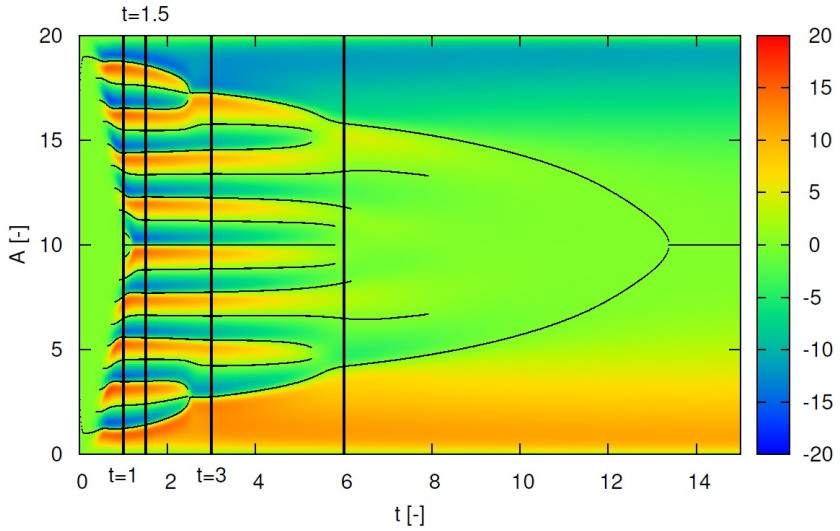
dent. Pour des allongements modérés ($A \leq 60$), l'augmentation de l'écartement des parois latérales a pour effet de réduire la vitesse de propagation V des cellules convectives engendrées en frontière. Ainsi la diminution de V, combinée à l'augmentation de l'allongement, contribue à accroître sensiblement le temps de déclenchement de la transition $t_{d->cv}$ relevé au cœur du film liquide.

3.5.4 Évolution du nombre de cellules de convection

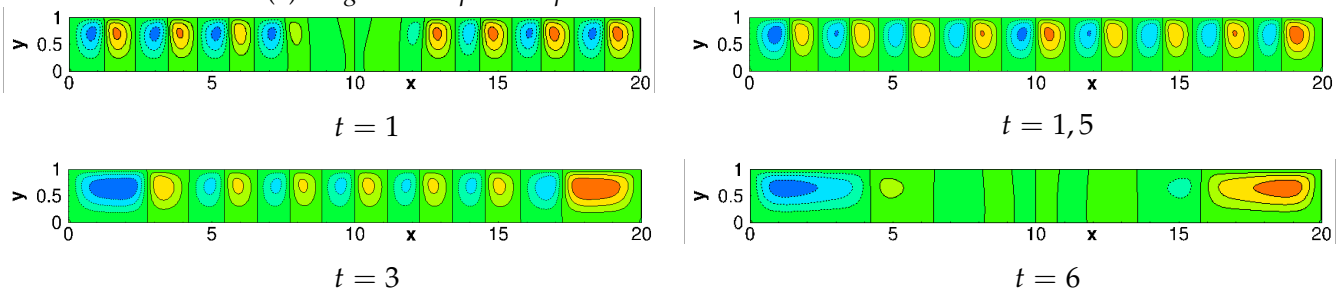
A l'aide des diagrammes espace-temps de la vitesse longitudinale à la surface libre, nous allons établir un décompte du nombre de cellules de convection au cours du temps. Pour cela, nous avons relevé à chaque instant, l'ensemble des positions pour lesquelles la vitesse s'annulait. Si le nombre de Péclet d'interface dépasse l'unité entre deux positions adjacentes de vitesse nulle, l'intervalle ainsi défini sera identifié comme étant la trace à la surface libre d'une structure convective ; dans le cas contraire, la solution fluide est localement dans un régime diffusif (vitesse négligeable).

Bien que cette structure convective est à différentier d'une "vraie" cellule convective, classiquement identifiée par les lignes de courant, il nous arrivera souvent par la suite de confondre les deux termes.

Pour $e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$ et $A = 20$ (Fig. 3.15a), un exemple est donné dans lequel les zéros de vitesse délimitant les structures convectives (lignes noirs) sont représentés sur le diagramme espace-temps de la vitesse à la surface libre. La soudaine apparition de ces zéros indique la naissance



(a) *Diagramme espace-temps et délimitation des cellules de convection*



(b) *Evolution des lignes de courant, $\psi \in [-2;2]$*

FIGURE 3.15 – *Diagramme espace-temps et lignes de courant ($e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$, $A = 20$).*

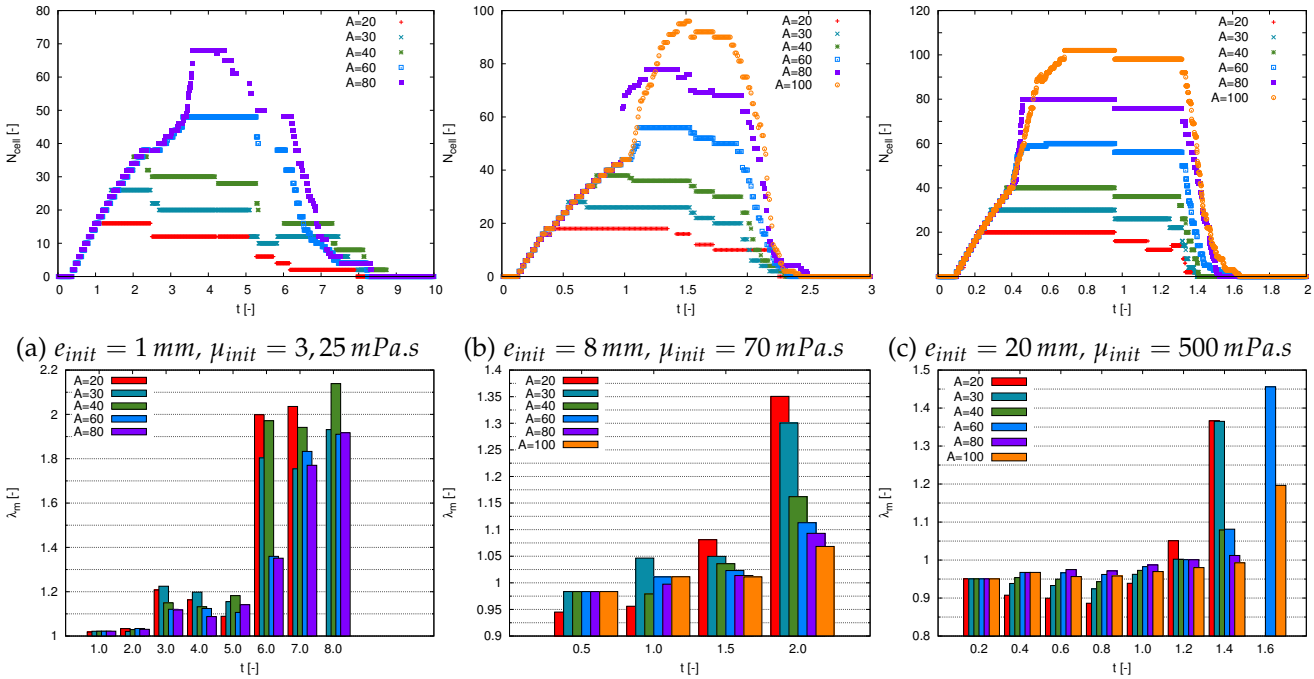
d'une *cellule*, dont l'intensité de vitesse à la surface libre dépasse la vitesse de diffusion thermique. Inversement, la disparition d'une ligne sur le diagramme, signifie que des *cellules* adjacentes ne sont plus discernables en terme d'intensité de vitesse : elles ne forment alors plus qu'une unique entité convective ou diffusive. En ne tenant pas compte des 2 cellules situées le long des parois latérales, la reconfiguration au cours du temps des cellules convectives présentées sur la figure 3.15a mène à la disparition

— de 4 structures convectives à $t \approx 2,5$, autour de $x = 2,5$ et $x = 17,5$;
— de 4 structures convectives à $t \approx 5$, autour de $x = 5$ et $x = 15$;
— de 4 structures convectives peu avant $t = 6$, autour de $x = A/2$ (le cœur redevient diffusif) ;
— de 2 structures convectives peu après $t = 6$, autour de $x = A/2$ (la région diffusive centrale s'étend) ;
— des 2 dernières structures convectives peu avant $t = 8$, autour de $x = 5$ et $x = 15$.

Les zéros de la fonction de courant de la figure 3.15b coïncident bien avec les zéros de vitesse du diagramme (Fig. 3.15a) lorsque l'intensité de la convection est importante. En revanche pour $t = 6$, certaines cellules visibles dans les coupes n'ont pas une intensité suffisante pour être comptées comme des cellules à part entière : elles sont fusionnées avec leur(s) voisines(s).

Dans ce paragraphe, nous examinons le rôle de l'allongement du film fluide sur l'évolution du

nombre de cellules (Figs. 3.16a-3.16c) et leur taille moyenne (Figs. 3.16d-3.16f) pour une viscosité donnée, et les trois épaisseurs $e_{init} = 1\,mm$, $8\,mm$ et $20\,mm$. Il est important de noter que les deux



(a) $e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$ (b) $e_{init} = 8\,mm$, $\mu_{init} = 70\,mPa.s$ (c) $e_{init} = 20\,mm$, $\mu_{init} = 500\,mPa.s$

(d) $e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$, $\Delta\tau = 1$ (e) $e_{init} = 8\,mm$, $\mu_{init} = 70\,mPa.s$, $\Delta\tau = 0,5$ (f) $e_{init} = 20\,mm$, $\mu_{init} = 500\,mPa.s$, $\Delta\tau = 0,2$

FIGURE 3.16 – *Étude des caractéristiques des cellules convectives. Les longueurs d'onde moyenne sont données pour des instants discrets séparés par un pas temporel* $\Delta\tau$.

grandes cellules convectives qui sont engendrées par les transferts thermiques aux parois latérales n'interviennent pas dans les décomptes.

Les évolutions du nombre de cellules données sur les figures 3.16a-3.16c sont globalement similaires et comportent différentes périodes caractéristiques.

1. Pour les temps courts, la solution fluide est principalement diffusive.
2. Passé un temps seuil qui diffère selon les épaisseurs et viscosités, le nombre de cellules augmente.
   — Cette augmentation semble relativement indépendante de l'allongement ; seul le niveau de saturation diffère.
   — Dans cette période d'accroissement, on distingue une augmentation brutale de la pente représentant l'évolution du nombre de cellules avec le temps, autour de $t = 3,5$, $t = 1$ et $t = 0,4$ pour respectivement $e_{init} = 1\,mm$, , $8\,mm$ et $20\,mm$. Cette variation soudaine est symptomatique de l'apparition de cellules convectives dans le cœur du film, non pas par propagation des parois latérales mais par amplification locale des erreurs d'origine numérique (voir le diagramme de la figure 3.9b).
3. Une fois que les cellules ont envahi l'ensemble de la solution liquide, leur nombre reste quasiment constant. Avec le temps, le nombre de cellules convectives diminue légèrement du fait des réorganisations locales liées, par exemple, à l'augmentation de taille des 2 cellules convectives au voisinage des frontières : pour $e_{init} = 1\,mm$, $A = 20$ et $t \in [\approx 1,25; \approx 2,5]$, ce nombre est de 18 (les deux grosses cellules convectives latérales ne sont pas comptées) puis il chute à 16 pour $t \in [\approx 2,5; \approx 5]$ (voir Fig. 3.16a pour $A = 20$ et le diagramme Fig. 3.15a).
4. Enfin sur les temps plus longs, le nombre de cellules qualifiées de convectives diminue relativement rapidement avant de laisser place à une solution de fluide au quasi repos, avec

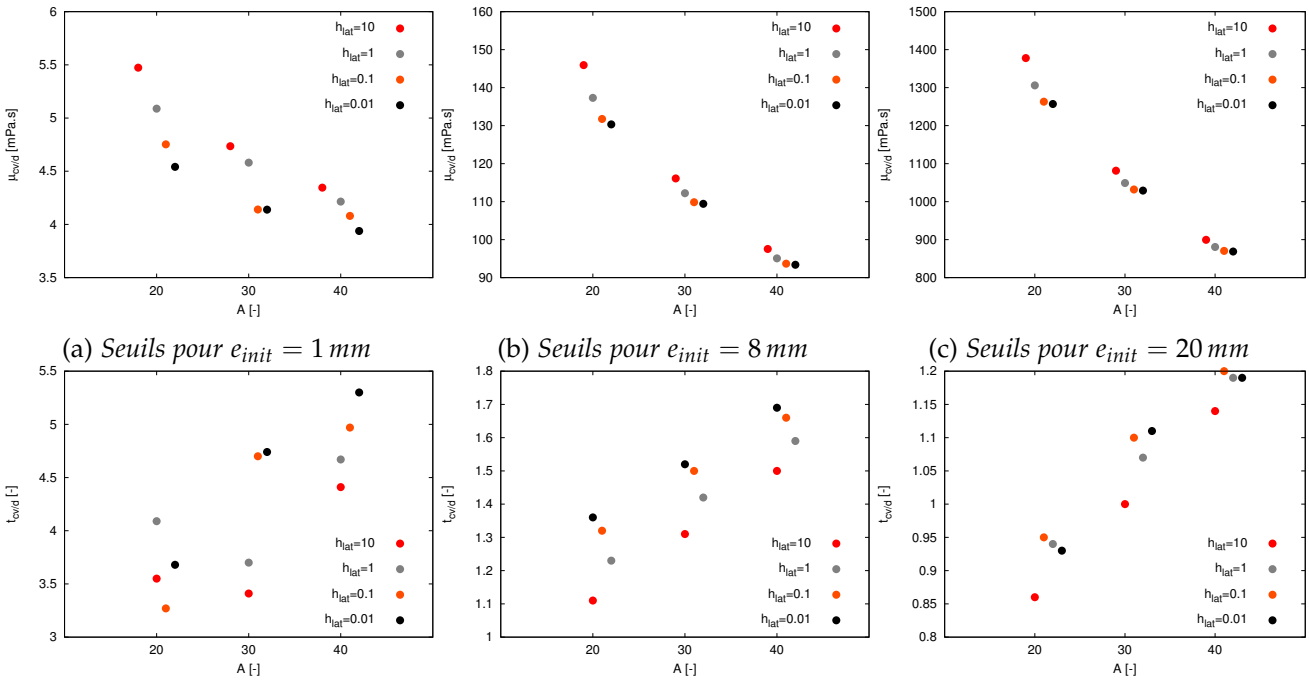
des transferts essentiellement diffusifs. L'instant à partir duquel les cellules convectives commencent à disparaître est sensiblement indépendant de l'allongement, de l'ordre de $t = 5$ pour $e_{init} = 1\,mm$, $t = 2$ pour $e_{init} = 8\,mm$ et $t = 1,3$ pour $e_{init} = 20\,mm$. Il faut cependant remarquer que pour $e_{init} = 1\,mm$, la période durant laquelle le régime convectif s'atténue est bien plus étendu que pour les 2 autres épaisseurs.

Les figures 3.16d-3.16f présentent, pour des instants discrets, la longueur moyenne λ_m des seules cellules identifiées comme convectives, pour différents allongements. Pour les 3 épaisseurs, la taille moyenne est quasi constante tant que le nombre de cellules reste globalement constant : $\lambda_m \approx 1\pm \approx 10\%$. Une dispersion légèrement plus importante est visible pour la plus petite épaisseur où λ_m est voisine de $1,2$ pour des temps supérieurs à 3. Dès que les cellules convectives commencent à disparaître au profit d'une solution localement diffusive, la taille des cellules augmente notablement, surtout pour la petite épaisseur ou les faibles allongements. Ce changement dans la taille caractéristique des structures convectives se retrouve évidemment sur les diagrammes espace-temps, par exemple celui présenté en Fig. 3.15a pour $e_{init} = 1\,mm$ et $A = 20$.

3.5.5 Dépendance des seuils 2D vis-à-vis du coefficient d'échange thermique convectif latéral

Nous allons étudier l'influence du coefficient d'échange thermique convectif latéral sur la viscosité seuil et le temps d'apparition de la convection au centre du film liquide. Pour réaliser cette étude, nous nous sommes restreints à des simulations bidimensionnelles ; l'extension des analyses aux écoulements tridimensionnels devrait s'appliquer.

Les figures 3.17a-3.17c montrent la dépendance de la viscosité de transition $\mu_{cv/d}$ entre les



(a) *Seuils pour* $e_{init} = 1\,mm$ (b) *Seuils pour* $e_{init} = 8\,mm$ (c) *Seuils pour* $e_{init} = 20\,mm$

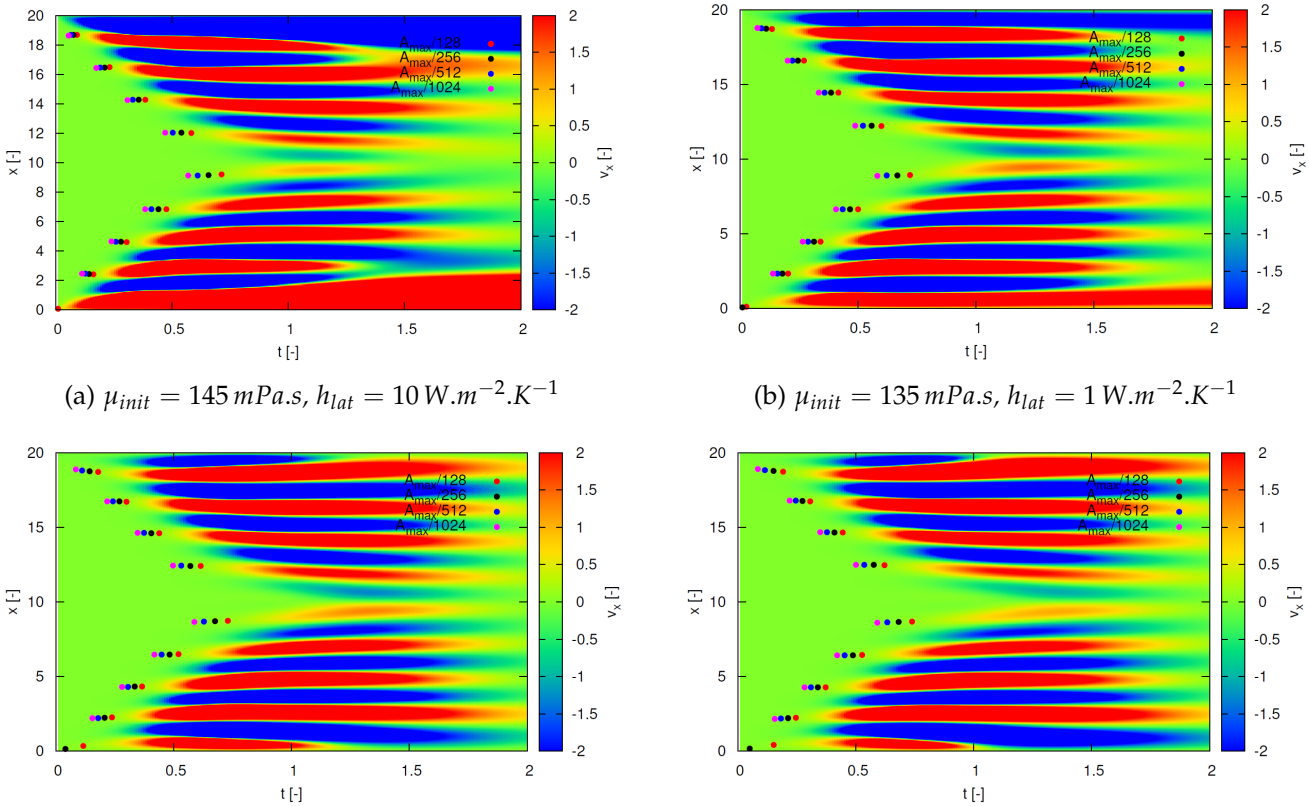
(d) *Temps de déclenchement pour* $e_{init} = 1\,mm$ (e) *Temps de déclenchement pour* $e_{init} = 8\,mm$ (f) *Temps de déclenchement pour* $e_{init} = 20\,mm$

FIGURE 3.17 – *Viscosités seuils* $\mu_{cv/d}$ *et temps de déclenchement de la convection* $t_{cv/d}$ *pour différents allongements* A *et coefficients d'échange thermique convectif* h_{lat}, $[h_{lat}] = W/(m^2.K)$.

solutions diffusives et les écoulements convectifs en fonction de A et h_{lat}, pour les épaisseurs $e_{init} = 1\,mm$, $8\,mm$ et $20\,mm$. La diminution du coefficient d'échange convectif de $h_{lat} = 10\,W/(m^2.K)$

à $h_{lat} = 0,01\,W/(m^2.K)$ se traduit par une décroissance de $\mu_{cv/d}$ de l'ordre de 10% (20% pour $e_{init} = 1\,mm$ et $A = 20$), et cela quels que soient l'épaisseur et l'allongement. Ces variations de $\mu_{cv/d}$ avec h_{lat} sont liées à la nature de la déstabilisation des écoulements. En effet, plus le coefficient d'échange thermique convectif diminue, plus le gradient thermique du fluide à la paroi est faible. Par conséquence, les inhomogénéités de tension de surface et de densité induites par ce gradient diminuent et engendrent un écoulement local d'intensité d'autant plus faible que les fuites thermiques sont petites. Ainsi, pour déstabiliser l'écoulement en son centre, la viscosité du fluide doit être réduite de sorte à limiter les effets dissipatifs visqueux qui freinent le mouvement fluide.

Les temps de déclenchement sont présentés sur les figures 3.17d-3.17f, toujours pour différents allongements et coefficients d'échange thermique convectif. Globalement, la diminution de h_{lat} conduit à un retardement du temps de déclenchement de l'instabilité convective dans la région centrale du film liquide. Ce comportement semble contraire aux résultats précédemment donnés. En effet, la diminution de h_{lat} entraînant une diminution de la viscosité de transition $\mu_{cv/d}$ (Figs. 3.17a-3.17c), en vertu des résultats présentés dans la section 3.5.3, nous devrions donc nous attendre à une réduction de $t_{cv/d}$. Or, nous observons un comportement strictement inverse. Pour expliquer cette contradiction, nous devons examiner les diagrammes espace-temps de la vitesse à la surface libre pour les différentes valeurs du coefficient d'échange thermique convectif (Fig. 3.18). Nous constatons que l'instant



(a) $\mu_{init} = 145\,mPa.s$, $h_{lat} = 10\,W.m^{-2}.K^{-1}$

(b) $\mu_{init} = 135\,mPa.s$, $h_{lat} = 1\,W.m^{-2}.K^{-1}$

(c) $\mu_{init} = 130\,mPa.s$, $h_{lat} = 0,1\,W.m^{-2}.K^{-1}$

(d) $\mu_{init} = 130\,mPa.s$, $h_{lat} = 0,01\,W.m^{-2}.K^{-1}$

FIGURE 3.18 – *Influence du coefficient d'échange latéral h_{lat} sur les diagrammes espace-temps ($e_{init} = 8\,mm$, $A = 20$).*

d'apparition des cellules convectives à la surface libre, le long des parois latérales, se décale vers des valeurs croissantes, avec la diminution de la valeur de h_{lat}. La résistance thermique augmentant avec la réduction de h_{lat}, il faut donc que l'écart de température entre l'environnement et le fluide soit plus élevé, pour que le flux de chaleur transféré à la solution soit identique.

3.5.6 Autre mode de déstabilisation : perturbations initiales aléatoires

Dans cette partie, les simulations sont réalisées pour des parois latérales adiabatiques ($h_{lat} = 0$) et un champ thermique perturbé à l'instant initial sur chaque nœud de température, par une fluctuation aléatoire tirée dans une loi de probabilité uniforme, comprise entre $[-r/2; +r/2]$. Dans les calculs qui suivent, la valeur de r est fixée à 10^{-3}.

L'objectif est de comparer les viscosités seuils $\mu_{cv/d}$, les temps d'apparition de la transition $t_{cv/d}$, les évolutions du nombre et de la taille moyenne des cellules convectives entre les simulations basées d'une part sur une perturbation initiale aléatoire ($h_{lat} = 0$, $r = 10^{-3}$) et d'autre part sur un échange thermique convectif aux parois latérales ($h_{lat} = 10\,W/(m^2.K)$, $r = 0$).

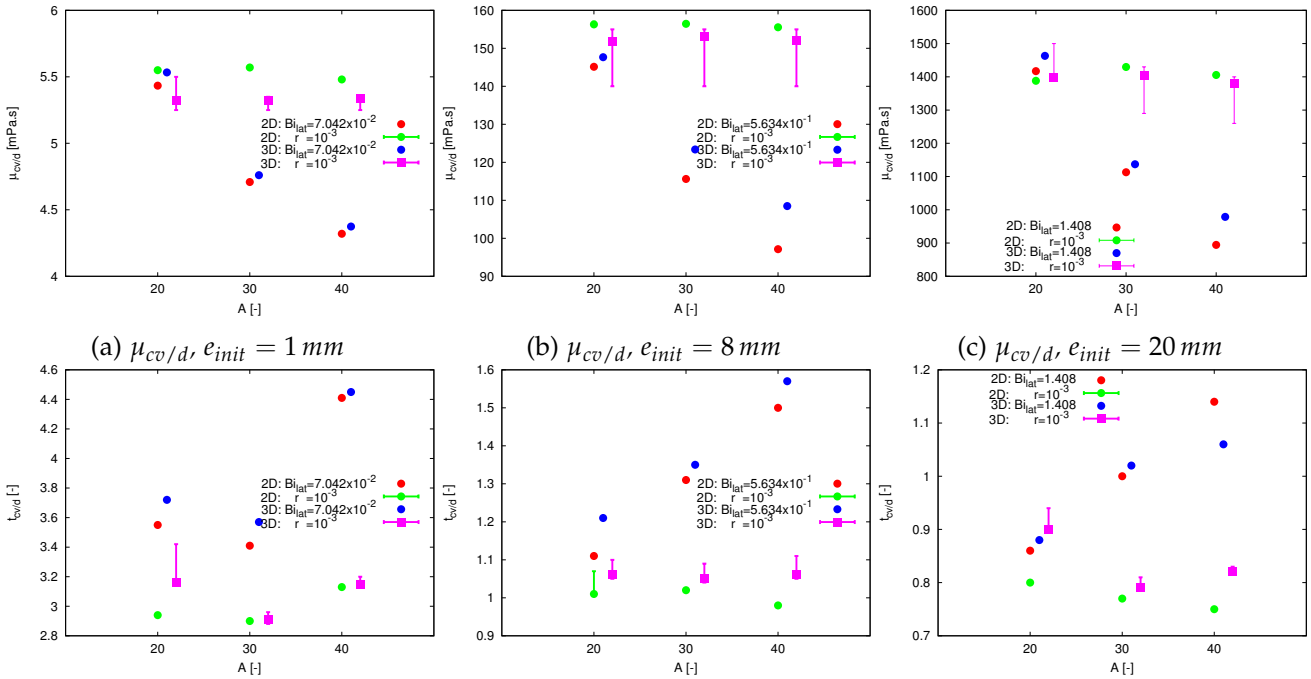
3.5.6.1 Comparaison des seuils : échanges thermiques convectifs contre perturbations initiales aléatoires

Puisque la section 3.4, page 45, a été consacrée à l'étude de $\mu_{cv/d}$ et $t_{cv/d}$ pour des simulations effectuées avec des coefficients d'échange thermique convectif, nous nous focaliserons ici essentiellement sur les effets des perturbations initiales aléatoires sur la transition.

L'ajout de perturbations aléatoires appliquées à l'instant initial sur le champ de vitesse ou de température a déjà été pratiqué par Touazi et al. [51] et Trouette et al. [57]. L'inconvénient d'une telle approche est double. D'abord, la perturbation n'a qu'une signification numérique et ne peut donc pas être interprétée aisément en terme physique. Ensuite, les seuils obtenus sont globalement sensibles aux tirages aléatoires : deux jeux de perturbations tirées de loi de probabilités identiques vont donner des valeurs $\mu_{cv/d}$ et $t_{cv/d}$ légèrement différentes. Ainsi, les caractéristiques critiques ne peuvent être à-priori déterminées que statistiquement, sur la base d'un grand nombre de simulations. D'après les travaux antérieurs utilisant des perturbations aléatoires [51, 57], il a été cependant montré que les seuils ne sont finalement que peu sensibles à la forme spatiale de la perturbation numérique, et également à son amplitude r. Ainsi dans ce qui suit, les seuils ne seront établis que pour un jeu de perturbations aléatoires, sans tenir compte des incertitudes engendrées par de nombreux tirages aléatoires.

Les figures 3.19a-3.19c comparent les viscosités critiques obtenues pour des parois latérales diathermes et adiabatiques. Comme déjà discuté dans les sections précédentes, les seuils diminuent avec l'augmentation de l'allongement pour des parois perméables à la chaleur. En revanche, ils restent quasi insensibles à A lorsque les parois sont isolées et qu'une perturbation thermique est introduite à l'instant initial. En effet, contrairement aux parois diathermes qui engendrent des écoulements convectifs locaux qui peuvent déstabiliser le cœur de la solution fluide par propagation des perturbations latérales (Fig. 3.20a), l'utilisation de perturbations aléatoires dans l'ensemble du mélange déstabilise simultanément et de façon homogène tous les points de la solution (Fig. 3.20b). Pour des parois adiabatiques, les viscosités de transition 3D ($\mu^{3D}_{cv/d}$) semblent légèrement inférieures à leurs homologues 2D ($\mu^{2D}_{cv/d}$). Cela indiquerait que les perturbations introduites à l'instant initial sont légèrement plus déstabilisantes dans les cas bidimensionnels que tridimensionnels. Ainsi qu'expliqué dans la section 3.4, page 45, le comportement est l'inverse pour des parois diathermes : les simulations 3D sont plus instables car la convection naît au voisinage des parois latérales qui sont deux fois plus nombreuses en 3D qu'en 2D.

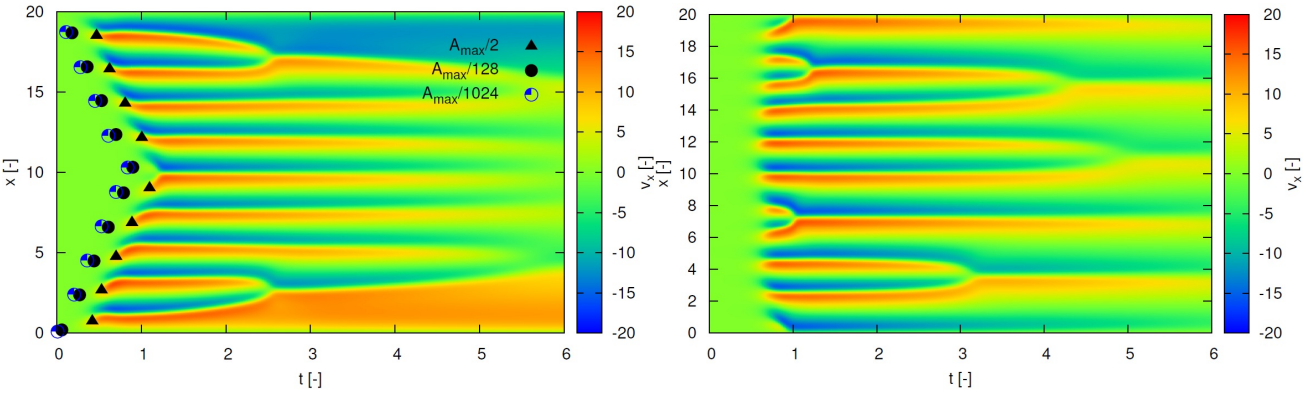
Les temps de déclenchement sont présentés sur les figures 3.19d-3.19f. Contrairement à ceux obtenus pour des simulations avec des échanges thermiques convectifs aux parois (voir Sec. 3.4 page 45), les valeurs de $t_{cv/d}$ sont relativement peu sensibles à l'allongement A lorsque des perturbations initiales sont utilisées. La raison de ce comportement est lié à la nature de la perturbation thermique initiale, c'est-à-dire une perturbation de l'ensemble des nœuds discrets de température, pour tout le film liquide et quel que soit l'allongement. Comme dit précédemment, la déstabilisation apparaît



(a) $\mu_{cv/d}$, $e_{init} = 1\,mm$ (b) $\mu_{cv/d}$, $e_{init} = 8\,mm$ (c) $\mu_{cv/d}$, $e_{init} = 20\,mm$

(d) $t_{cv/d}$, $e_{init} = 1\,mm$ (e) $t_{cv/d}$, $e_{init} = 8\,mm$ (f) $t_{cv/d}$, $e_{init} = 20\,mm$

FIGURE 3.19 – *Viscosités seuils $\mu_{cv/d}$ et temps de déclenchement $t_{cv/d}$ de la convection pour différents allongements A et modes de déstabilisation, ($h_{lat} = 0,07$, $r = 0$) et ($h_{lat} = 0$, $r = 10^{-3}$). La limite inférieure (resp. supérieure) de chacune des barres indique une solution convective (resp. diffusive), et le symbole est une valeur extrapolée de la viscosité $\mu_{cv/d}$ et du temps $t_{cv/d}$.*



(a) $r = 0$ *et* $h_{lat} = 0,07\,W/(m^2.K)$ (b) $r = 10^{-3}$ *et* $h_{lat} = 0$

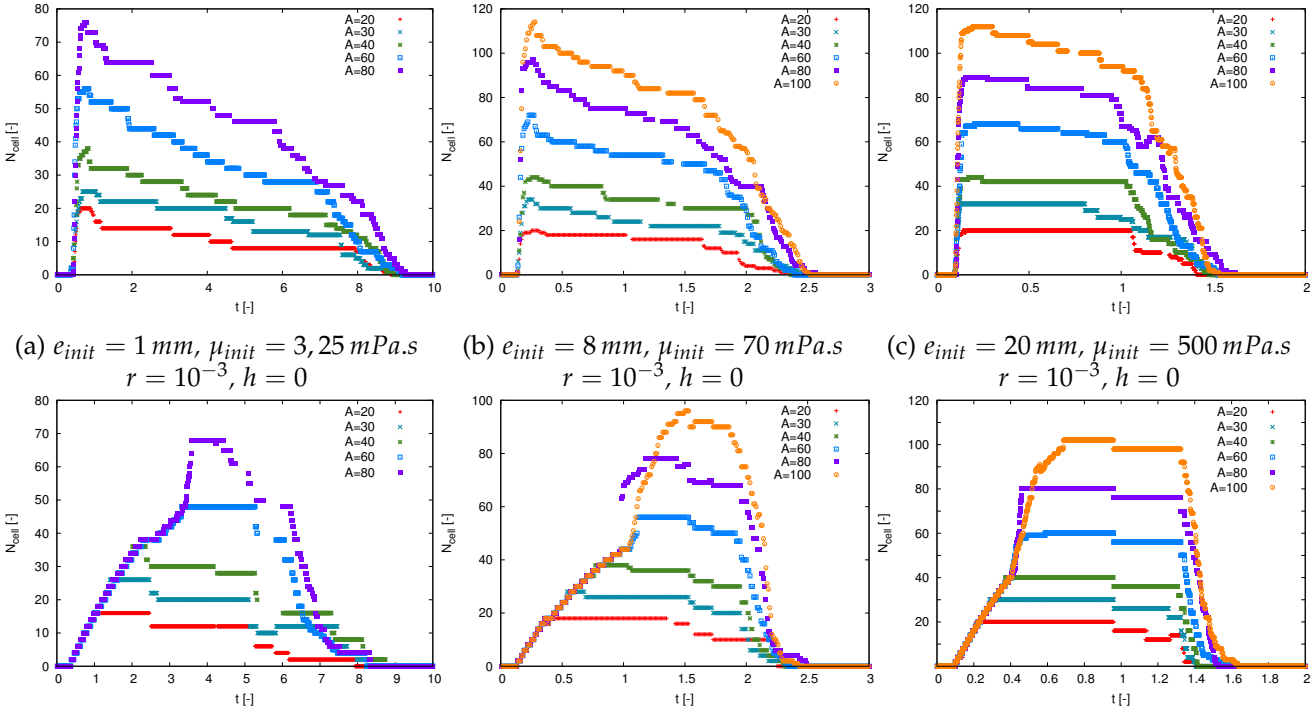
FIGURE 3.20 – *Diagrammes espace-temps de vitesse à la surface libre ($A = 20$, $e_{init} = 1\,mm$ et $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$)*

de façon synchrone dans toute la solution (Fig. 3.20b). La comparaison des temps critiques entre les simulations 2D et 3D semble également indiquer que la déstabilisation est plus précoce lorsqu'une approximation bidimensionnelle est effectuée.

Bien qu'il faille garder à l'esprit que les résultats issus des simulations avec des perturbations initiales dépendent du tirage aléatoire (forme spatiale de la perturbation initiale), il apparaît cependant clairement que les viscosités de transition diffusif/convectif ainsi que les temps de déclenchement de la convection sont relativement indépendants de l'allongement. Ce comportement est clairement différent lorsque la perturbation n'est plus introduite à l'instant initial sur la totalité du champ thermique, mais engendrée par la convection induite par les gradients de température le long des parois latérales (parois diathermes).

3.5.6.2 Évolution du nombre de cellules de convection pour les simulations 2D

Les figures 3.21a-3.21c présentent l'évolution du nombre de cellules convectives ($Pe_c > 1$) pour des simulations réalisées avec des perturbations initiales. Les figures 3.21d-3.21f ont déjà été données



(a) $e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$ $r = 10^{-3}$, $h = 0$ (b) $e_{init} = 8\,mm$, $\mu_{init} = 70\,mPa.s$ $r = 10^{-3}$, $h = 0$ (c) $e_{init} = 20\,mm$, $\mu_{init} = 500\,mPa.s$ $r = 10^{-3}$, $h = 0$

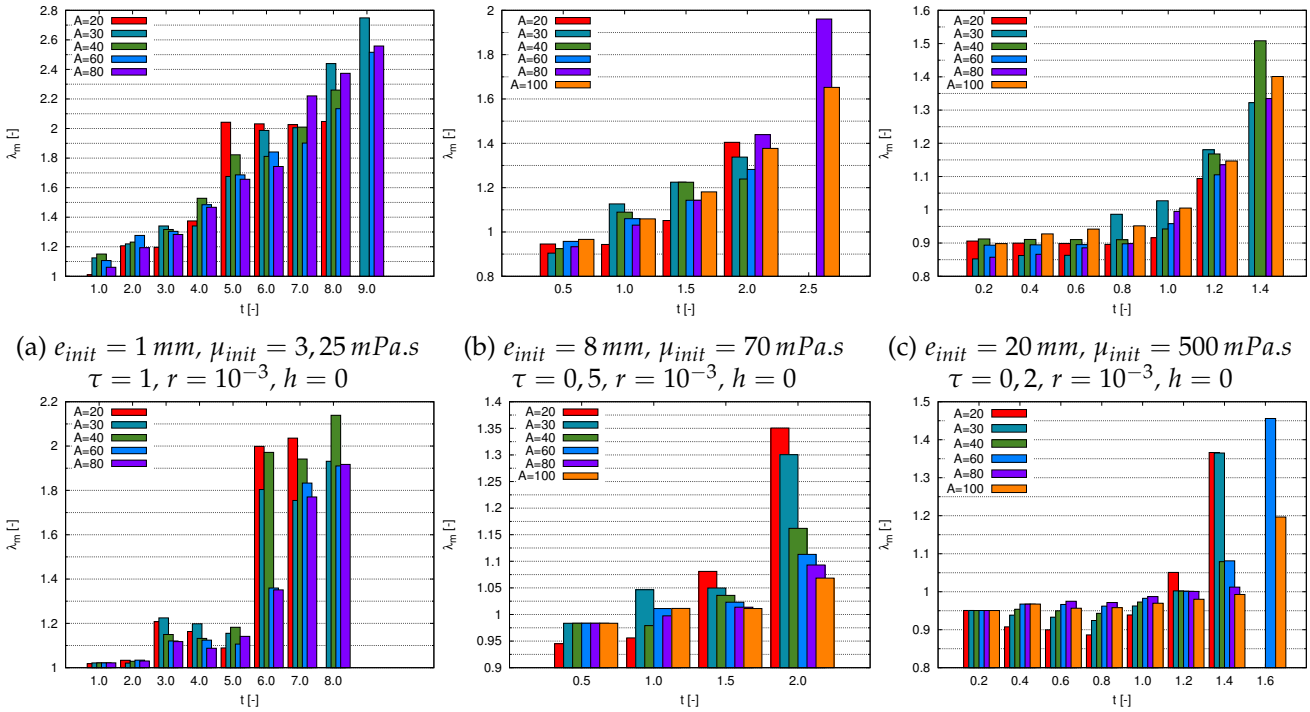
(d) $e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$ $r = 0$, $h = 10\,W/(m^2.K)$ (e) $e_{init} = 8\,mm$, $\mu_{init} = 70\,mPa.s$ $r = 0$, $h = 10\,W/(m^2.K)$ (f) $e_{init} = 20\,mm$, $\mu_{init} = 500\,mPa.s$ $r = 0$, $h = 10\,W/(m^2.K)$

FIGURE 3.21 – *Évolution du nombre des cellules convectives pour (a-c) une perturbation aléatoire ($r = 10^{-3}$, $h = 0$) et (d-f) un échange thermique convectif aux parois ($r = 0$, $h = 10\,W/(m^2.K)$).*

et discutées dans la section 3.5.4, page 52. Elle n'ont été rappelées que pour faciliter les comparaisons entre les deux modes de production des perturbations.

Contrairement aux simulations effectuées avec un échange thermique aux parois latérales et pour lesquelles le nombre de cellules convectives N_{cell} croit linéairement avec le temps (3.21d-3.21f), les cellules apparaissent ici de façon quasi simultanée. Après cette étape de croissance très rapide de la valeur de N_{cell}, nous observons une lente réorganisation qui se traduit par une légère diminution du nombre de cellules convectives. Cette réorganisation est irrégulière dans le temps (Fig. 3.20b) et rompt la symétrie autour de $x = A/2$, laquelle est parfaitement respectée dans le cas de parois diathermes (Fig. 3.20a).

Les figures 3.22a-3.22c donnent les évolutions de la taille moyenne des cellules convectives pour des perturbations aléatoires ($r = 10^{-3}$, $h = 0$). Comme précédemment, les figures 3.22d-3.22f ne sont présentées ici qu'à des fins de comparaisons ; les analyses de ces figures ont déjà été menées dans la section 3.5.4, page 52. Pour des parois diathermes, nous constatons que les tailles moyennes des cellules λ_m ont tendance à augmenter du fait de la lente réorganisation des cellules convectives qui engendre une diminution de leur nombre.



(a) $e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$ $\tau = 1$, $r = 10^{-3}$, $h = 0$

(b) $e_{init} = 8\,mm$, $\mu_{init} = 70\,mPa.s$ $\tau = 0,5$, $r = 10^{-3}$, $h = 0$

(c) $e_{init} = 20\,mm$, $\mu_{init} = 500\,mPa.s$ $\tau = 0,2$, $r = 10^{-3}$, $h = 0$

(d) $e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 3,25\,mPa.s$, $\Delta\tau = 1$, $r = 0$, $h = 10\,W/(m^2.K)$

(e) $e_{init} = 8\,mm$, $\mu_{init} = 70\,mPa.s$, $\Delta\tau = 0,5$, $r = 0$, $h = 10\,W/(m^2.K)$

(f) $e_{init} = 20\,mm$, $\mu_{init} = 500\,mPa.s$, $\Delta\tau = 0,2$, $r = 0$, $h = 10\,W/(m^2.K)$

FIGURE 3.22 – *Évolution de la taille moyenne des cellules convectives pour (a-c) une perturbation aléatoire ($r = 10^{-3}$, $h = 0$) et (d-f) un échange thermique convectif aux parois ($r = 0$, $h = 10\,W/(m^2.K)$). Les tailles sont relevées à des instants discrets, de fréquence $1/\Delta\tau$.*

3.6 Développement des cellules convectives à la surface libre pour les simulations 3D

3.6.1 Identification des cellules à la surface libre

L'objet de cette section est de reconstruire, pour des simulations tridimensionnelles, la trace des cellules convectives à la surface libre pour mettre en place une analyse systématique de ces cellules. Pour cela, nous allons nous appuyer sur des diagrammes de Voronoï qui ont, par exemple, déjà été utilisés par Eckert et al. [23] (sous le nom de reconstruction de Wigner-Seitz) pour identifier la forme des cellules convectives. Cette reconstruction consiste à utiliser un ensemble $\mathcal{S}$ de n points p_i situés dans un plan : $\mathcal{S} = \{p_1, ..., p_n\}$. Pour le problème thermique, ces points sont les positions des minima de température. et seront par la suite nommés "centres des cellules convectives". Chaque arête des cellules est ensuite reconstruite comme appartenant à la médiane au segment reliant deux centres adjacents. L'ensemble des arêtes séparant un centre de tous ses voisins engendre une cellule polygonale.

La figure 3.23 montre un exemple de construction du pavage de Voronoï. Pour les points p et $q \in \mathcal{S}$, on définit d'abord la droite médiane $B(p,q)$ comme l'ensemble des points z équidistants de p et q :

$$B(p,q) = \{z \in \mathbb{R}^2; \|p - z\| = \|q - z\|\}$$

On note ensuite $D(p,q)$ le demi plan défini par l'ensemble des points plus proches de p que de q :

$$D(p,q) = \{z \in \mathbb{R}^2; \|p - z\| < \|q - z\|\}$$

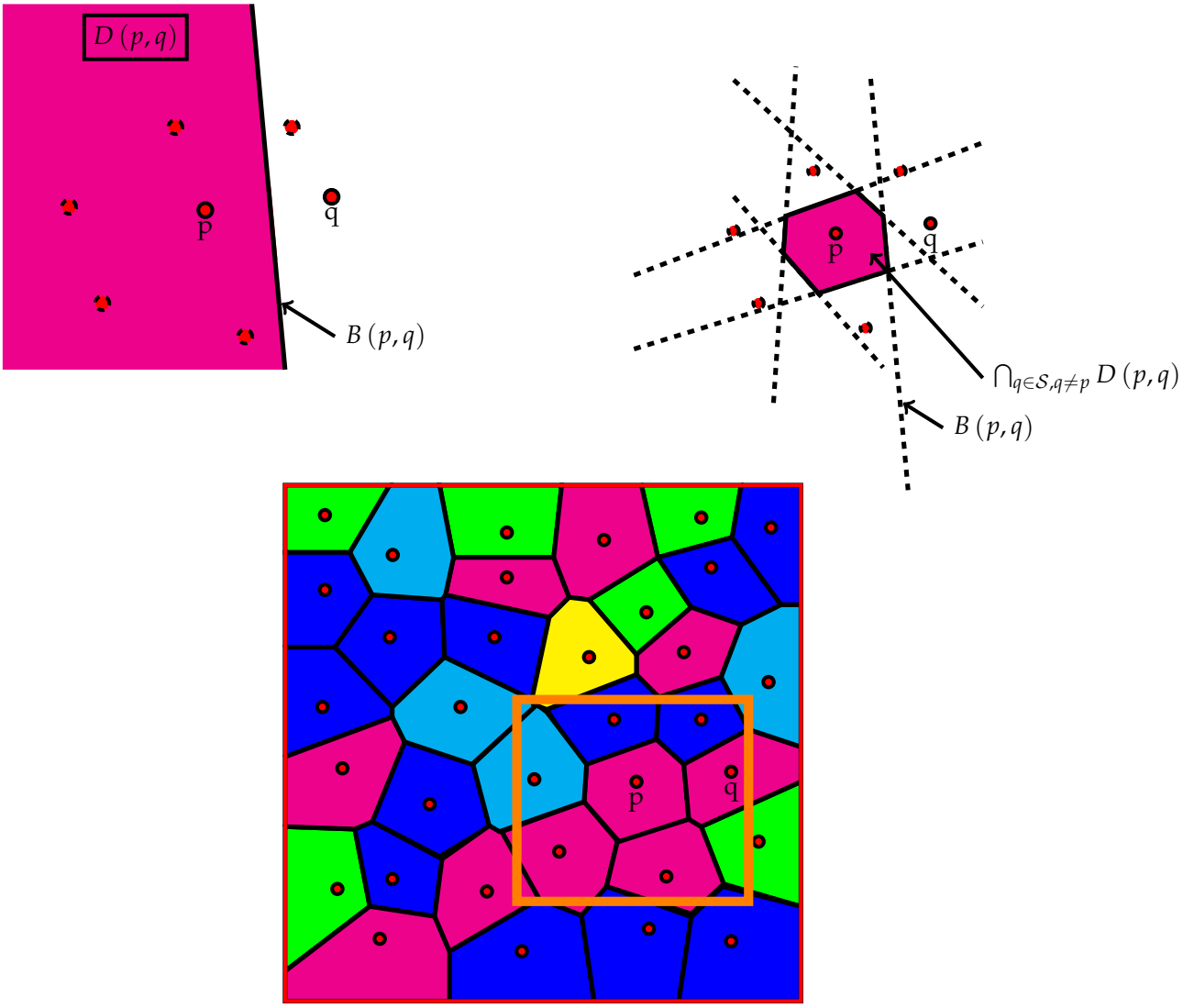
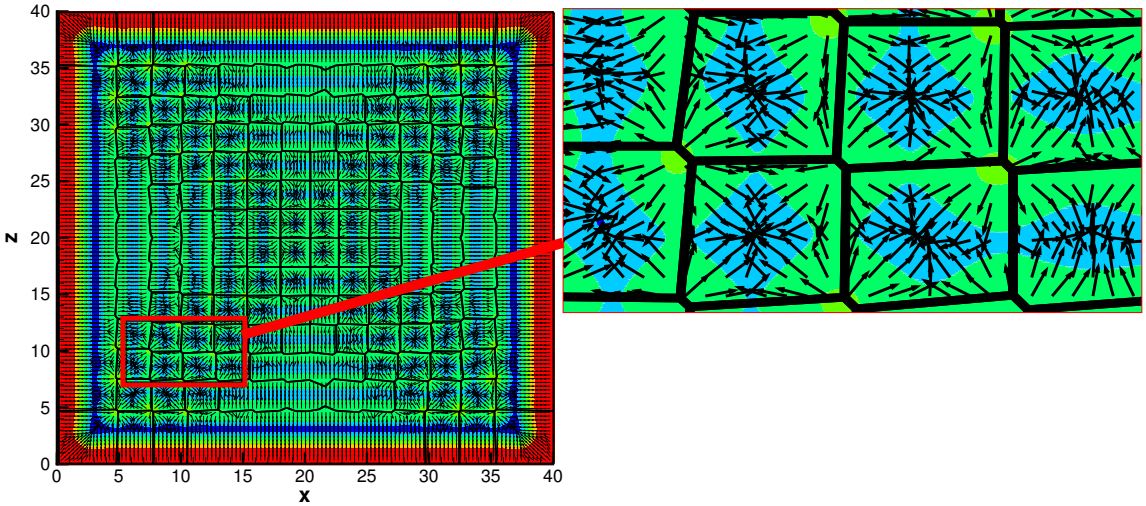


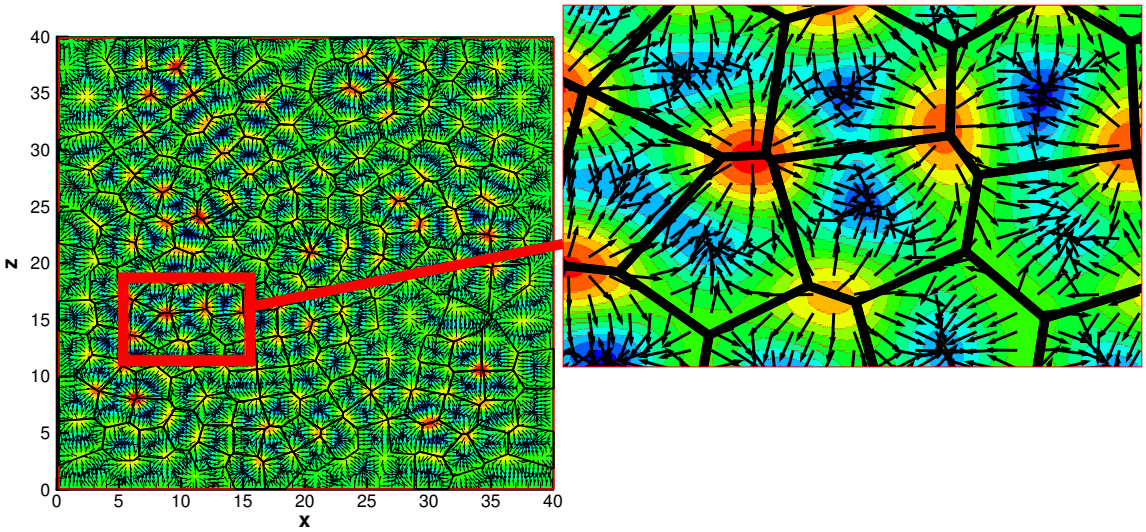
FIGURE 3.23 – *Reconstruction des cellules par un pavage de l'espace avec un algorithme de Voronoï [34].*

La cellule de Voronoï associée au centre $p \in \mathcal{S}$ est l'intersection de tous les demi plans $D(p, q_i)$ engendrés par l'ensemble des points $q_i \in \mathcal{S}$, $q_i \neq p$, c'est-à-dire l'ensemble des points les plus proches de p que de n'importe quel autre point de $\mathcal{S}$.

Les figures 3.24a et 3.24b présentent la reconstruction des structures convectives superposées, à la fois aux fluctuations autour de θ_m du champ thermique, et au champ de vitesse à la surface libre. La première illustration est obtenue pour une simulation avec un échange thermique convectif aux parois latérales alors que la seconde correspond à un calcul avec des frontières adiabatiques et une perturbation initiale aléatoire sur le champ de température. Une présentation plus approfondie des structures qui se développent au cours du temps à la surface libre, fera l'objet des sections 3.6.2 et 3.6.3. D'après ces figures, nous constatons que les vecteurs vitesses quittent les zones chaudes de couleur rouge (ou verte), pour converger vers les régions froides représentées par les spots bleus. Ces régions chaudes correspondent à des remontées de fluide, tandis que les régions froides correspondent à des descentes. Les arêtes obtenues lors de la reconstruction des cellules à la surface libre indiquent qualitativement les zones ascendantes, de l'écoulement qui sépareront deux cellules adjacentes, dont les cœurs correspondent à une région de fluide plongeant.



(a) *Échange convectif aux parois latérales. Paramètres :* $t = 4,2$, $\theta_m = -0,561$, $e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 4,32\,mPa.s$, $h_{lat} = 10\,W/(m^2.K)$, $r = 0$, $A = 40$.



(b) *Condition initiale thermique aléatoire. Paramètres :* $t = 3,2$, $\theta_m = -0,481$, $e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 5,25\,mPa.s$, $h_{lat} = 0$, $r = 10^{-3}$, $A = 40$.

FIGURE 3.24 – *Superposition de la fluctuation de température autour de* θ_m *à la surface libre, vecteurs vitesse et reconstruction des structures convectives. Les vecteurs vitesses ont une taille indépendante de leur intensité. Échelles de température : a* $[-0,02; +0,02]$, *b* $[-0,005; +0,005]$.

L'inconvénient de la reconstruction des cellules convectives par des cellules de Voronoï réside dans l'impossibilité de détecter des rouleaux de convection, c'est-à-dire des structures dont les dimensions caractéristiques diffèrent fortement selon les directions de l'espace. Pour résoudre cette difficulté, nous avons fusionné certaines cellules adjacentes sur la base du constat suivant : dans le cas d'un rouleau, l'essentiel du vecteur vitesse est porté par la direction orthogonale à l'axe du rouleau. Ainsi, si la vitesse moyenne normale à l'interface entre deux cellules adjacentes reconstruites est inférieure à 1% de la norme moyenne de cette vitesse le long de l'arête, les cellules sont fusionnées. Un exemple de cette fusion entre deux cellules est donné sur la figure 3.25 qui présente le champ

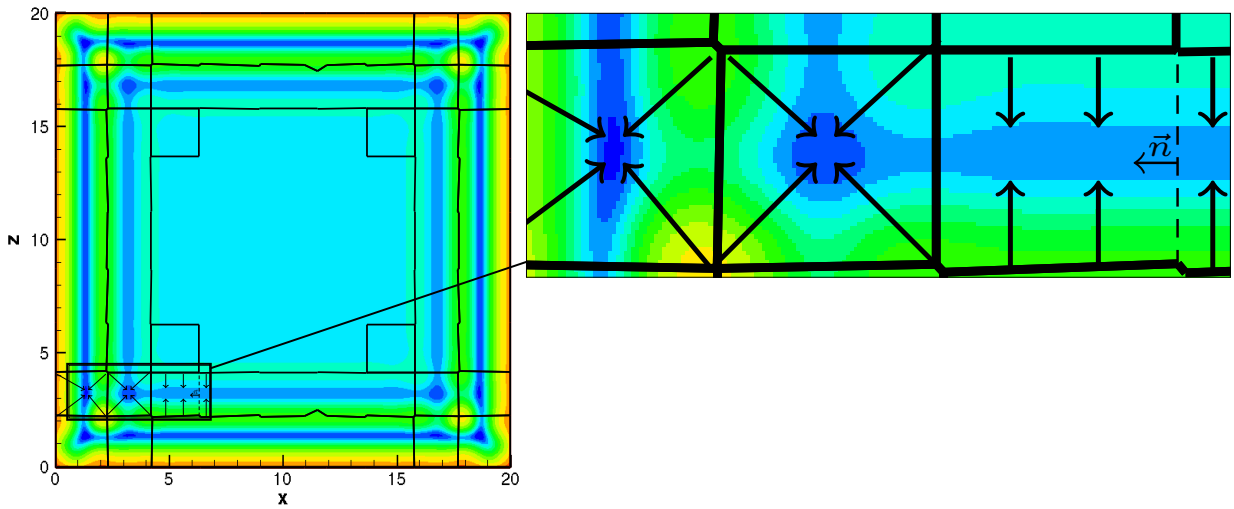


FIGURE 3.25 – *Champ des fluctuations de température autour de $\theta_m = -0,557$ ($e_{init} = 8\,mm$, $\mu_{init} = 146\,mPa.s$, $h = 10\,W/(m^2.K)$, $A = 20$). Exemple de construction de rouleaux de convection. L'agrandissement présenté à droite montre la fusion de 2 cellules adjacentes séparées par une arête dessinée par un trait continu. Les vecteurs noirs symbolisent les sens des écoulements principaux.*

de température à l'interface dans le cas d'un échange thermique convectif aux parois latérales, pour $e_{init} = 8\,mm$, $\mu_{init} = 146\,mPa.s$, $h = 10\,W/(m^2.K)$ et $A = 20$. L'agrandissement d'une partie de la région inférieure gauche fait apparaître une arête, matérialisée par une ligne discontinue, qui vérifie la condition mentionnée ci-dessus, c'est-à-dire $|\overrightarrow{v}.\overrightarrow{n}| < 0.01\|\overrightarrow{v} \wedge \overrightarrow{n}\|$. La suppression de cette interface (et de nombreuses voisines) permet d'identifier des rouleaux convectifs de grandes longueurs (Fig. 3.25).

Une structure, de type cellule ou rouleau, est dite convective si le maximum du nombre de Péclet construit sur le module de la vitesse locale excède l'unité. En notant $\mathcal{C}$ l'ensemble des points appartenant à cette structure,

— si

$$\max_{(x,z)\in\mathcal{C}} (\|\overrightarrow{v}(x, e_{init}, z)\| e_{init}/\alpha) \geq 1 \tag{3.4}$$

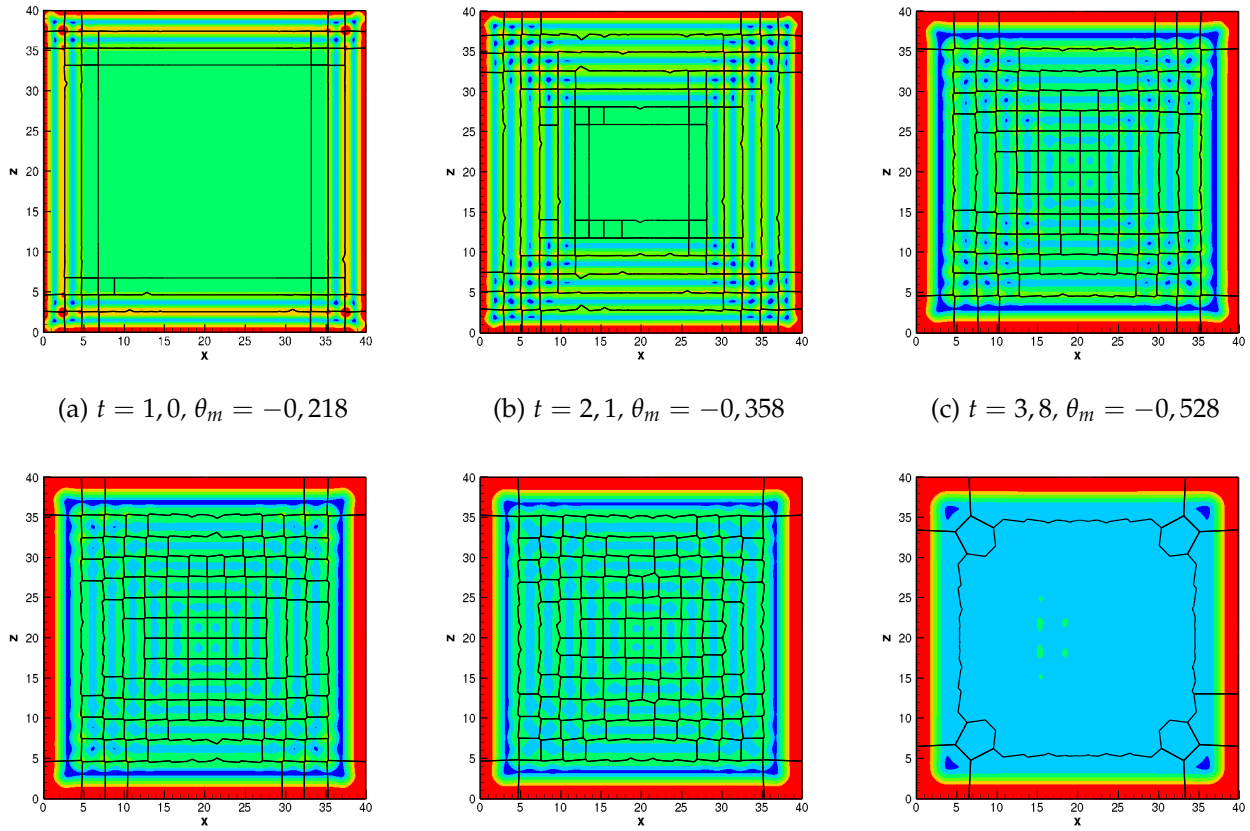
alors $\mathcal{C}$ est dite convective,

— sinon elle est qualifiée de diffusive.

3.6.2 Échanges thermiques convectifs aux parois latérales

Lorsque des échanges thermiques convectifs sont imposés aux parois latérales, les structures convectives naissent d'abord au voisinage des parois. Ce comportement est illustré sur la figure 3.26,

par une simulation effectuée proche du seuil $\mu^{3D}_{cv/d} = 4,37\,mPa.s$, pour $e_{init} = 1mm$, $\mu_{init} = 4,32\,mPa.s$, $h = 10\,W/(m^2.K)$ et $A = 40$. Ces structures convectives sont composées de 4 rouleaux dont les axes



(a) $t = 1,0$, $\theta_m = -0,218$ (b) $t = 2,1$, $\theta_m = -0,358$ (c) $t = 3,8$, $\theta_m = -0,528$

(d) $t = 4,2$, $\theta_m = -0,561$ (e) $t = 4,9$, $\theta_m = -0,613$ (f) $t = 6,3$, $\theta_m = -0,697$

FIGURE 3.26 – *Reconstruction des cellules convectives superposées au champ de température à la surface libre. Les échelles de température sont comprises dans l'intervalle* $[-0,02; +0,02]$ *(*$e_{init} = 1mm$, $\mu_{init} = 4,32\,mPa.s$, $h = 10\,W/(m^2.K)$, $A = 40$*)*

sont parallèles aux frontières et de cellules de forme carrée dans les coins ; les cellules carrées résultent de l'interaction locale de deux rouleaux d'axe orthogonal. Le cœur de la surface est diffusif. Au cours du temps, les cellules convectives envahissent lentement la totalité de la surface libre en créant à la fois des rouleaux parallèles dont la taille décroit avec la distance à la paroi qui les a engendrés, et des cellules de forme carrée dans les directions des diagonales de l'enceinte fluide. Avec le temps, les rouleaux éloignés du bord ont tendance à se désagréger pour donner naissance à des cellules de forme carrée. Enfin pour les temps très longs, $t = 6,3$ sur la figure 3.26, la solution fluide redevient diffusive en son centre, seul subsistent des rouleaux et cellules au voisinage des parois où les transferts de chaleurs continuent à produire un écoulement fluide d'intensité non négligeable.

A l'aide de la reconstruction des structures convectives, nous avons réalisé un dénombrement des cellules et rouleaux satisfaisant la condition d'écoulement convectif (Eq. (3.4)). La figure 3.27 donne l'évolution du nombre de cellules et rouleaux de convection au cours du temps. Le nombre de structures augmente, plus rapidement dans le cas des cellules que des rouleaux. Alors que cette croissance atteint son apogée à $t \simeq 2,25$ pour les rouleaux, avant que leur nombre rediminue pour atteindre 4 (1 rouleau par paroi) pour $t \simeq 5,75$, le nombre de cellules carrées continue à croître jusqu'à $t \simeq 2,75$, reste quasi constant avant de chuter brutalement à $t \simeq 5,5$.

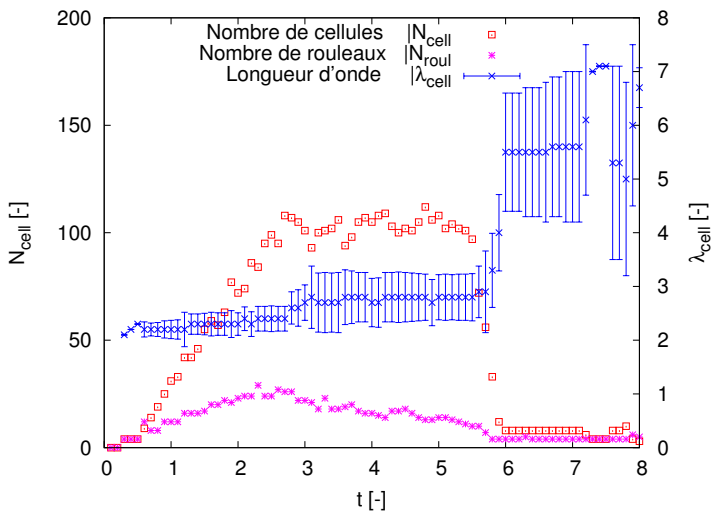


FIGURE 3.27 – *Évolution temporelle du nombre de cellules et rouleaux de convection (axe gauche), ainsi que la longueur d'onde moyenne des cellules (axe droit), pour $e_{init} = 1\,mm$, $\mu_{init} = 4,32\,mPa.s$, $h = 10\,W/(m^2.K)$ et $A = 40$. Les barres d'erreur représentent 2 fois l'écart type à la moyenne.*

Au graphe précédemment commenté, a été ajoutée sur l'axe d'ordonnée de droite la longueur d'onde des cellules λ_{cell} dont la définition est la suivante :

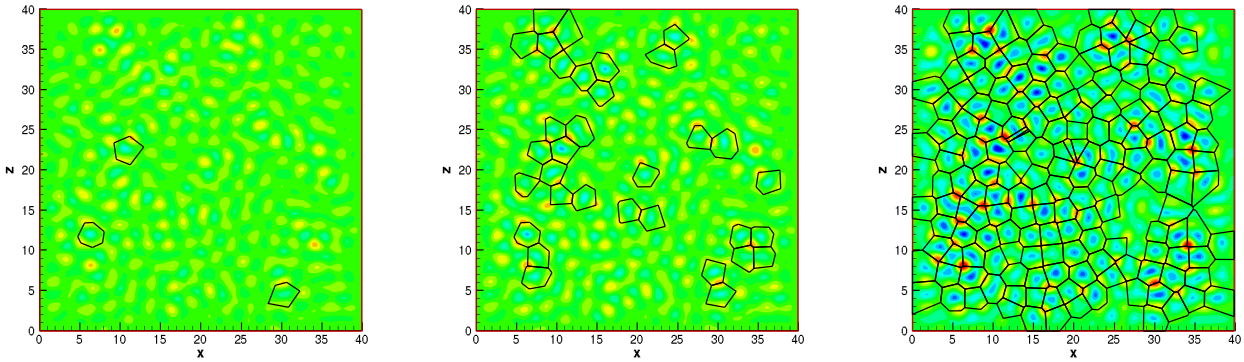
$$\lambda_{cell} = \frac{4S_{cell}}{P_{cell}} \tag{3.5}$$

où P_{cell} est le périmètre de la cellule de surface S_{cell}. Cette définition, classiquement utilisée en hydraulique pour définir le diamètre mouillé pour un fluide circulant dans une conduite, permet de retrouver des longueurs caractéristiques cohérentes pour des cellules de forme carrée et circulaire. Les longueurs d'onde moyennes sont de l'ordre de $\lambda_{cell} = 2,3$ sur la période de croissance de nombre de cellules avant d'augmenter légèrement à environ $2,75$ dans le régime où le nombre de cellules est quasi constant. Cette accroissement de la longueur d'onde moyenne s'accompagne d'une augmentation de la dispersion des tailles des cellules convectives (augmentation de la taille des barres d'erreur) et d'une diminution du nombre de rouleaux de convection. Enfin pour $t \gtrsim 5,5$, la soudaine disparition de la convection au centre de la surface libre permet un accroissement conséquent de la taille des cellules ($\lambda_{cell} \approx 5,5$) dont la forme devient pentagonale ou hexagonale.

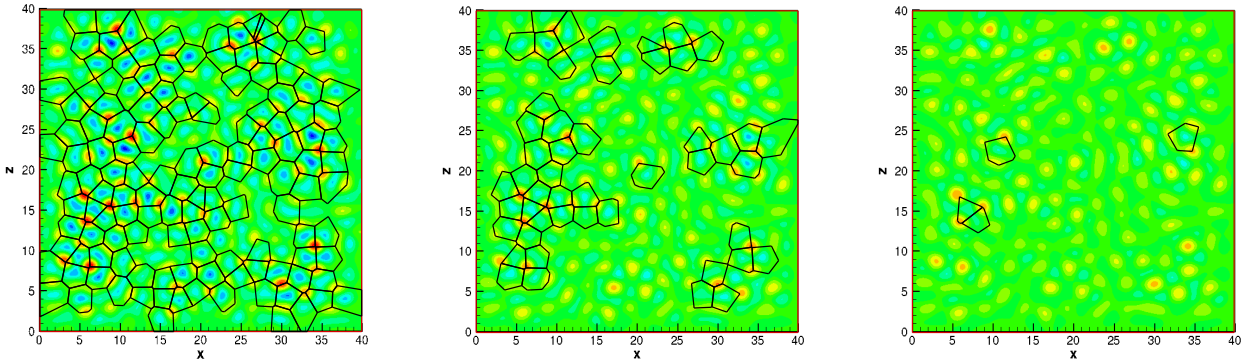
3.6.3 Parois adiabatiques et perturbations aléatoires initiales

Lorsque les parois sont isolées et que des perturbations aléatoires sont imposées à l'instant initial sur le champ de température, le développement temporel des structures convectives devient très différent de celui observé quand les parois sont diathermes. La figure 3.28 montre pour une viscosité $\mu_{init} = 5,25\,mPa.s$ voisine du seuil $\mu^{3D}_{cv/d} = 5,34\,mPa.s$, pour un unique jeu de perturbations aléatoires et une épaisseur de $e_{init} = 1\,mm$, l'évolution à la surface libre des fluctuations de la température autour de $\theta_m(t)$, superposées aux cellules convectives reconstruites à l'aide de l'algorithme de Voronoï. Pour l'ensemble de ces cellules, la vitesse maximale est supérieure à la vitesse de diffusion thermique (voir Eq. 3.4). Il apparaît nettement que ces structures se développent à partir des germes issus de la condition initiale aléatoire de température, ce qui engendre une distribution non prédictible de l'emplacement des cellules convectives aux cours du temps. Modifier la perturbation aléatoire modifie les cellules convectives identifiées au cours du temps. Cependant comme mentionné dans [51], les caractéristiques s'avèrent finalement assez peu indépendantes du tirage aléatoire choisi.

La figure 3.29 indique sur l'axe vertical gauche, l'évolution du nombre de cellules convectives



(a) $t = 2,1$, $\theta_m = -0,365$ (b) $t = 2,3$, $\theta_m = -0,388$ (c) $t = 3,2$, $\theta_m = -0,481$



(d) $t = 3,7$, $\theta_m = -0,527$ (e) $t = 4,3$, $\theta_m = -0,577$ (f) $t = 4,6$, $\theta_m = -0,600$

FIGURE 3.28 – *Reconstruction des cellules convectives superposées aux fluctuations du champ de température à la surface libre. Les échelles de température sont comprises dans l'intervalle* $[-0,005; +0,005]$ *(*$e_{init} = 1\,mm$*,* $\mu_{init} = 5,25\,mPa.s$*,* $h = 0$*,* $r = 10^{-3}$*,* $A = 40$

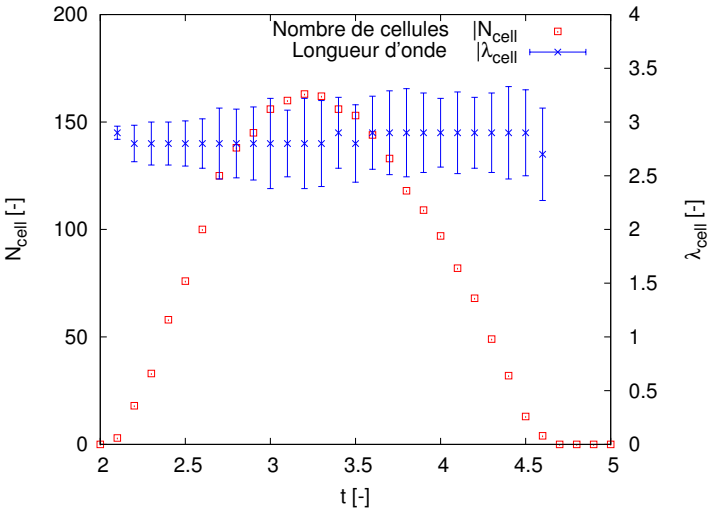


FIGURE 3.29 – *Évolution temporelle du nombre de cellules (axe gauche) et de la longueur d'onde moyenne des cellules (axe droit), pour* $e_{init} = 1\,mm$*,* $\mu_{init} = 5,25\,mPa.s$*,* $h = 0$*,* $r = 10^{-3}$ *et* $A = 40$*. Les barres d'erreur représentent 2 fois l'écart type à la moyenne.*

au cours du temps. Globalement, les cellules convectives commencent à apparaître pour $t \simeq 2$, leur nombre augmente régulièrement jusqu'à atteindre un maximum d'environ 162 pour $t \simeq 3,25$, avant

de diminuer de sorte à ce que la solution fluide retrouve une situation de repos (plus de cellules convectives). Cette évolution est assez différente de celle observée pour les simulations avec des parois diathermes et sans perturbations initiales, (Fig. 3.27) : les cellules qui ont envahi la totalité de la surface libre persistent pendant un intervalle de temps avant de s'éteindre. La différence entre ces deux comportements réside probablement dans le fait que, pour les parois diathermes, de l'énergie est toujours introduite dans le système fluide, via les transferts thermiques convectifs aux frontières verticales, ce qui a pour effet de retarder la restabilisation de l'écoulement vers une solution diffusive.

Il est également intéressant de souligner la différence d'évolutions des nombres de cellules dans le cas bidimensionnel (Figs. 3.21a-3.21c) et tridimensionnel. En effet, la croissance du nombre de cellules à la surface libre semble quasiment instantané en 2D alors qu'il est beaucoup plus progressif en 3D. Cela est probablement dû aux valeurs des viscosités choisies lors des simulations qui sont plus ou moins éloignées des valeurs critiques, de 40% pour le calcul bidimensionnel et de seulement 1,7% dans le cas tridimensionnel.

Sur l'axe droit de la figure 3.29 est donnée l'évolution de la longueur d'onde moyenne λ_m définie par la relation (3.5). Au cours du temps, les longueurs d'onde moyennes des cellules restent quasiment constantes, de l'ordre de $\lambda_{cell} = 2,85$, une valeur très proche de celle obtenue lorsque les parois latérales étaient diathermes ($2,3 \leq \lambda_{cell} \leq 2,75$). En remarquant que le nombre maximal de cellules est 162 à $t \simeq 3,25$, et qu'une cellule occupe une surface de l'ordre de $\lambda_{cell}^2 = 8,12$, nous avons donc que la fraction maximale de surface occupée par des cellules convectives à la surface libre atteint $8,12 \times 162/80^2 \approx 80\%$ (voir Fig. 3.28 à $t = 3,2$).

3.7 Comparaison des viscosités de transition diffusion/convection avec des travaux antérieurs

Avant de présenter des comparaisons des viscosités de transition diffusion/convection avec de la littérature, nous avons récapitulé nos résultats dans le tableau 3.6. Dans celui-ci, les bornes de chaque

e_{init} (mm)	μ_{init} (mPa.s) Parois diathermes sans perturbation initiale ($r = 0$ - $h_{lat} \neq 0$) 2D	3D	Parois adiabatiques avec perturbations initiales ($r \neq 0$ - $h_{lat} = 0$) 2D	3D
1	[4,32 ; 5,43]	[4,37 ; 5,53]	[5,48 ; 5,55]	[5,32 ; 5,34]
8	[97,14 ; 145,1]	[108,5 ; 147,7]	[155,5 ; 156,3]	[151,7 ; 152,0]
20	[894,1 ; 1417]	[978,7 ; 1463]	[1388 ; 1406]	[1380 ; 1399]

Table 3.6 – *Synthèse des seuils des simulations bidimensionnelles et tridimensionnelles, pour un échange thermique convection aux parois latérales ou des frontières adiabatiques et une perturbation initiale thermique aléatoire.*

intervalle indiquent les variations de la viscosité interpolée à la transition en fonction de l'allongement A. Conformément aux analyses des seuils effectuées dans les sections 3.4 et 3.5.6.1, l'influence de l'allongement est marginal sur les seuils pour les simulations avec des frontières adiabatiques et une perturbation initiale thermique aléatoire. En revanche cet effet est notable lorsque des échanges thermiques convectifs sont imposés aux parois latérales.

La comparaison présentée sur la figure 3.30 entre nos valeurs de viscosité seuil et celles issues d'études antérieures [57, 18, 51] ne peut pas être vue comme une quelconque validation de nos travaux dans la mesure où les critères et méthodes utilisés pour identifier la viscosité à la transition entre une solution diffusive et un écoulement convectif varient selon les auteurs. Les méthodes utilisées par ces auteurs pour évaluer la viscosité à la transition sont maintenant succinctement introduites.

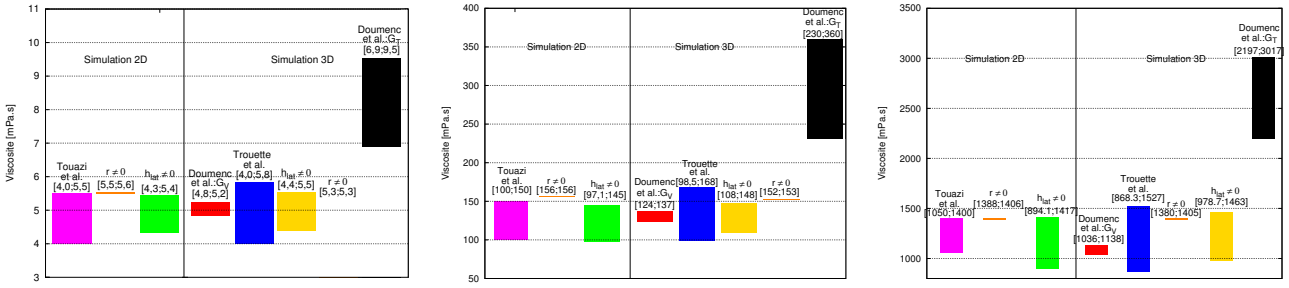
Les travaux de Trouette et al. [57] sont basés sur une résolution des équations transitoires de Navier-Stokes et de l'énergie. La discrétisation spatiale utilise une approximation pseudo-spectrale et les dérivées temporelles sont exprimées par un schéma Euler retardé d'ordre 2. Une méthode de projection permet de découpler les variables de vitesse et pression. Le domaine fluide étudié est cylindrique avec un rapport d'aspect $R/e = 10$. Les parois sont adiabatiques et le fluide est initialement au repos avec une distribution de température définie de la façon suivante : la température réduite de chaque nœud du maillage est issue d'une variable aléatoire tirée dans une loi de distribution uniforme de support $[-r/2; +r/2]$. Dans ces travaux, les valeurs de perturbations comprises entre $r = 10^{-9}$ et $r = 10^{-3}$ ont été utilisées La transition entre la solution de diffusion et l'écoulement convectif est basée sur le nombre de Péclet construit sur la vitesse maximale sur les nœuds de collocation. L'écoulement est qualifié de convectif dès que ce nombre de Péclet dépasse la valeur unitaire.

Comme précédemment, les travaux menés par Touazi et al. [51] sont basés sur la résolution des équations instationnaires de la mécanique des fluides. Ces équations sont approchées à l'aide d'un schéma volumes finis original [15, 52, 14]. Il repose sur un maillage ayant des propriétés particulières et fonctionne pour des variables collocalisées. Une méthode spécifique de stabilisation est également appliquée pour contrôler les oscillations de pression. Les équations non-linéaires de Navier-Stokes et de l'énergie sont exprimées de façon totalement implicite et résolues intégralement couplées par une méthode de Newton-Raphson. Le domaine fluide est bidimensionnel avec un allongement $L/e = 20$. Toutes les parois sont isolées thermiquement et la température initiale est homogène, égale à celle de l'environnement (température réduite nulle). Des perturbations sont introduites sur le champ de vitesse sur chaque point de collocation. Pour chaque composante, elles résultent d'un tirage aléatoire dans une loi de probabilité uniforme de support $[-r/2; +r/2]$. L'étude des viscosités seuils a majoritairement été effectuée avec $r = 4$. Le critère de détermination de la transition est identique à celui utilisé par Trouette et al. [57] (voir paragraphe ci-dessus).

La méthode de détermination de la viscosité de transition utilisée par Doumenc et al. [18] diffère totalement des auteurs précédents. Elle repose sur la recherche du taux maximal d'amplification temporelle d'une perturbation dont la forme est également à déterminer (méthode de stabilité linéaire non-normale). Pour cela, les équations de Navier-Stokes et de l'énergie linéarisée autour de la solution diffusive transitoire sont intégrées dans le temps et couplées avec leur forme adjointes. Le film fluide étant considéré infini, les équations sont exprimées dans l'espace de Fourier pour les directions horizontales et une discrétisation pseudo-spectrale est utilisée pour la direction verticale. Finalement pour chaque mode de Fourier, les équations instationnaires sont simplement unidimensionnelles. Comme décrit précédemment, c'est la perturbation optimale donnant le taux d'amplification maximal à chaque temps qui est recherché. Ce taux d'amplification G est, soit une mesure de l'énergie thermique G_T (forme quadratique de la température), soit de l'énergie cinétique G_v. La transition est définie lorsque le coefficient d'amplification choisi, G_T ou G_v, atteint une valeur prescrite $G_{seuil} \geq 1$. Dans les travaux [18], les valeurs choisies sont $G_{seuil} = 1$ et $G_{seuil} = 100$.

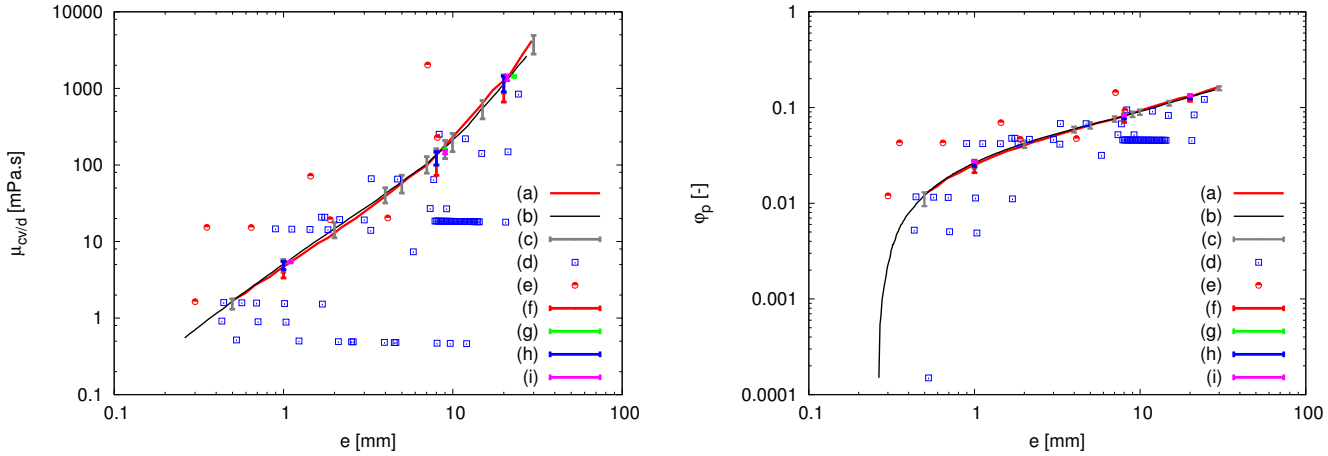
La figure 3.30 présente la comparaison des viscosités seuils obtenues dans les travaux mentionnés précédemment et celles issues de notre présente contribution (Tab. 3.6). Les résultats sont donnés sous forme d'intervalles car ils proviennent, soit d'un encadrement des seuils [57, 51], soit d'une sensibilité des seuils vis-à-vis du taux d'amplification seuil G_{seuil} compris entre 1 et 100 [18]). Les valeurs issues de Doumenc et al. [18] et Trouette et al. [57] proviennent respectivement de données prélevées des figures 3.31a et 3.31b. Pour Touazi et al. [51], les viscosités seuils ayant permis de produire la courbe mentionnée dans la figure 3.31a sont issues d'un encadrement dont les valeurs numériques nous sont connues (et qui ne sont pas issues de la référence).

Une première analyse rapide des seuils indique que, hormis ceux déterminés par l'analyse de stabilité non-normale pour un taux d'amplification construit sur la forme quadratique de la température G_T, les autres résultats recouvrent des intervalles de valeurs compatibles les uns avec les autres.



(a) *Épaisseur* $e_{init} = 1\,mm$ (b) *Épaisseur* $e_{init} = 8\,mm$ (c) *Épaisseur* $e_{init} = 20\,mm$

FIGURE 3.30 – *Comparaisons des viscosités de transition obtenus dans nos travaux (Tab. 3.6) avec celles de la littérature, Trouette et al. [57], Doumenc et al. [18], et Touazi et al. [51]*



(a) *Évolution des seuils de transition convectif-diffusif par rapport à la viscosité de la solution.*

(b) *Évolution des seuils de transition convectif-diffusif par rapport à la fraction volumique de polymère.*

FIGURE 3.31 – *Comparaisons des seuils de transition convectif-diffusif obtenus dans nos travaux (Tab. 3.6) avec ceux de la littérature. La courbe* ***(a)*** *représente la simulation bidimensionnelle de Touazi et al. [51]. Les résultats issus de l'analyse de stabilité linéaire non-normale de Doumenc et al. [18], pour un taux d'amplification* $G_V = 1$*, sont indiqués par* ***(b)****. Les seuils tridimensionnels de Trouette et al. [57] obtenus pour une solution contenue dans un récipient cylindrique sont indiqués par la lettre* ***(c)****. Les points* ***(d)*** *et* ***(e)*** *illustrent les seuils convectif et diffusif obtenus expérimentalement par Toussaint et al. [53]. Les barres* ***(f)****,* ***(g)****,* ***(h)*** *et* ***(i)*** *montrent les valeurs reportées dans le tableau 3.6, et représentent le cas des simulations bidimensionnelles avec échange convectif aux parois latérales avec un coefficient d'échange convectif* $h_{lat} = 10\ W.m^{-2}.K^{-1}$*, les simulations bidimensionnelles obtenues avec une perturbation aléatoire d'amplitude* $r = 10^{-3}$*, les seuils tridimensionnels issus de l'échange convectif aux parois latérales pour le même coefficient que dans le cas des simulations bidimensionnels, les résultats issus d'une perturbation aléatoire d'amplitude identique à celles des simulations bidimensionnelles.*

4 Naissance de la convection dans un modèle massique d'évaporation

Sommaire

4.1 Illustration de l'écoulement massique 73
4.2 Influence des paramètres numériques sur les seuils 75
4.3 Étude des seuils de transition convectif/diffusif 77
4.4 Genèse en espace et en temps des cellules convectives 80
4.4.1 Évolution de l'écoulement convectif pour des écoulements 2D : Diagrammes espace-temps 80
4.4.2 Développement des cellules convectives à la surface libre pour un écoulement tridimensionnel, $\varphi_p = 0,01$ et $e_{init} = 11,5\,\mu m$ 82

Nous présentons dans ce chapitre les résultats issus du modèle massique d'évaporation pour une solution contenue dans un récipient délimité par des parois adiabatiques et par une surface libre indéformable et mobile S_{sl} (Fig. 4.1). Les transferts massiques se déroulent sur des temps beaucoup plus longs que ceux liés aux transferts thermiques (voir Sec. 2.2.3) : les variations d'épaisseur de la solution ne sont plus négligeables et le champ de température est supposé être à l'équilibre (fin du régime thermique). Ainsi, seules les équations de Navier-Stokes et du champ massique seront résolues dans ce chapitre. Le flux d'évaporation de solvant Φ_s étant connu, il est possible de connaître l'épaisseur du film liquide à tout instant :

$$e(t) = e_{\text{init}} - v_{\text{evap},l} \times t$$

avec $v_{\text{evap},l} = \Phi_s/\rho_s$. Les grandes valeurs des paramètres adimensionnels Bo/Cr.Pe et 1/Cr.Pe devant l'unité permettent de supposer l'interface plane (voir Sec. 2.2.1.2). Nous n'effectuerons des simulations numériques que sur des temps sur lesquels l'activité de la solution reste proche de 1 (solution idéale), c'est-à-dire pour une fraction volumique de solvant supérieure à $0,4$ [21]. Les variations spatiale et temporelle de la fraction volumique de solvant (et donc de polymère) influent très fortement sur la viscosité du mélange. A partir de mesures expérimentales effectuées par Gorand et al. [28], une loi empirique a été établie donnant la viscosité de la solution PIB/toluène en fonction de la fraction volumique de polymère $\varphi_p = 1 - \varphi_s$ [53, 58] :

$$\log(\mu) = 8,235 + 14,02 \times X + 6,575 \times X^2 + 1,392 \times X^3 + 0,1114 \times X^4 \quad \text{avec} \quad X = \log(\varphi_p) \tag{4.1}$$

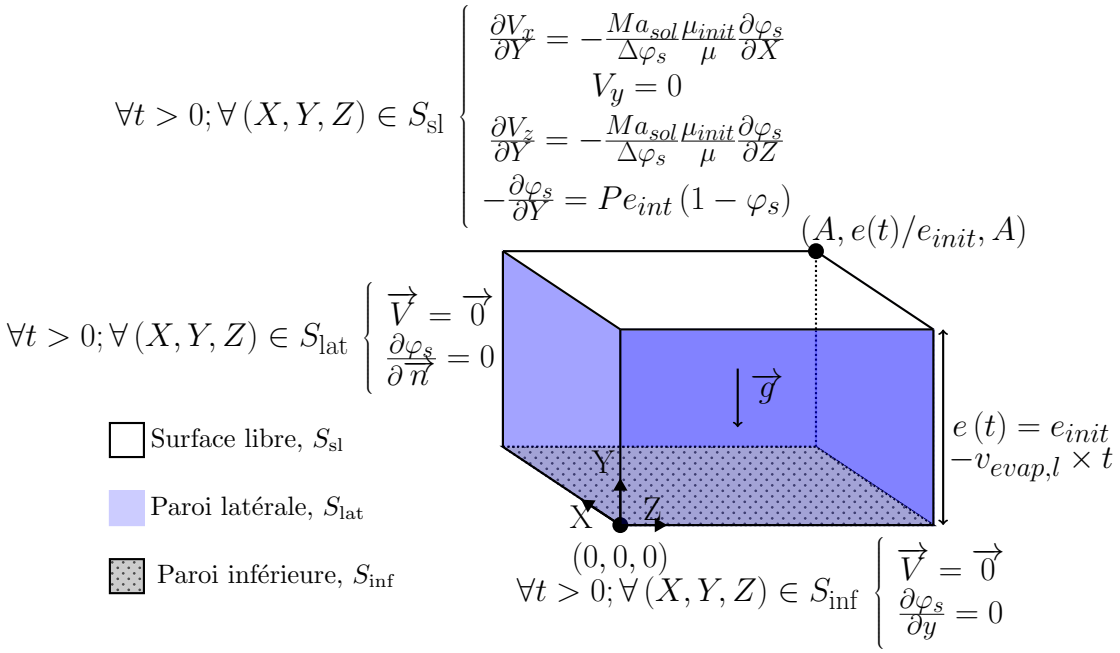


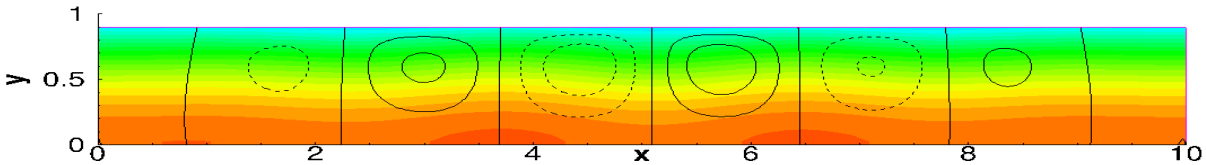
FIGURE 4.1 – *Schéma du dispositif dans le cas d'une simulation purement massique.*

A la différence du modèle thermique (cf. Chapitre 3), où la déstabilisation de la solution transitoire diffusive était provoquée principalement par les perturbations induites par les transferts thermiques convectifs aux parois latérales, nous allons travailler ici, avec des parois imperméables et des perturbations initiales du champ massique, par des fluctuations spatiales aléatoires d'amplitude maximale r, basées sur des tirages issus de la loi de probabilité uniforme de support $[-r/2; r/2]$. Nous rappelons sur la figure 4.1 les différentes conditions aux limites appliquées lors de la résolution des équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et des espèces.

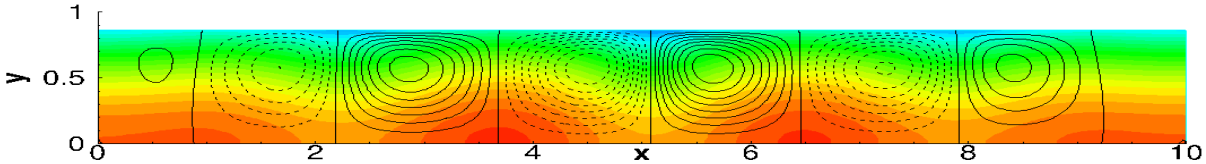
4.1 Illustration de l'écoulement massique

Nous présentons dans cette section deux exemples d'évolution de l'écoulement et du champ massique pour les mêmes paramètres ($e_{init} = 11,5\,\mu m$ et $\varphi_p = 0,01$ et un allongement $A = 10$), l'une a été obtenue en utilisant une approximation bidimensionnelle du film liquide, l'autre en réalisant une simulation tridimensionnelle complète.

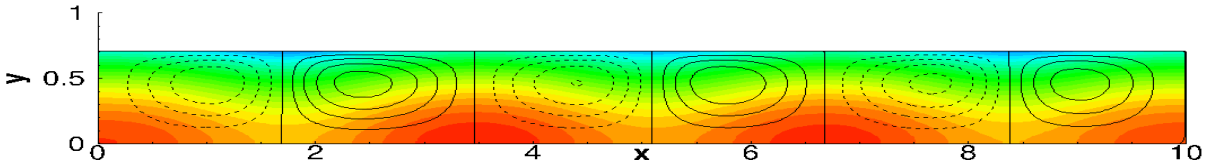
La figure 4.2 montre, dans le cas bidimensionnel, l'évolution de la fluctuation du champ de concentration autour d'une valeur moyenne $\varphi_{s,m}(t)$ ainsi que les lignes de courant. A la différence



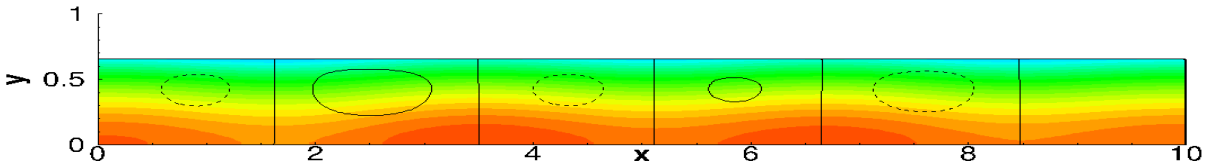
(a) $t = 3,00$, $\varphi_{s,m} = 0,989$



(b) $t = 4,00$, $\varphi_{s,m} = 0,988$



(c) $t = 8,50$, $\varphi_{s,m} = 0,986$



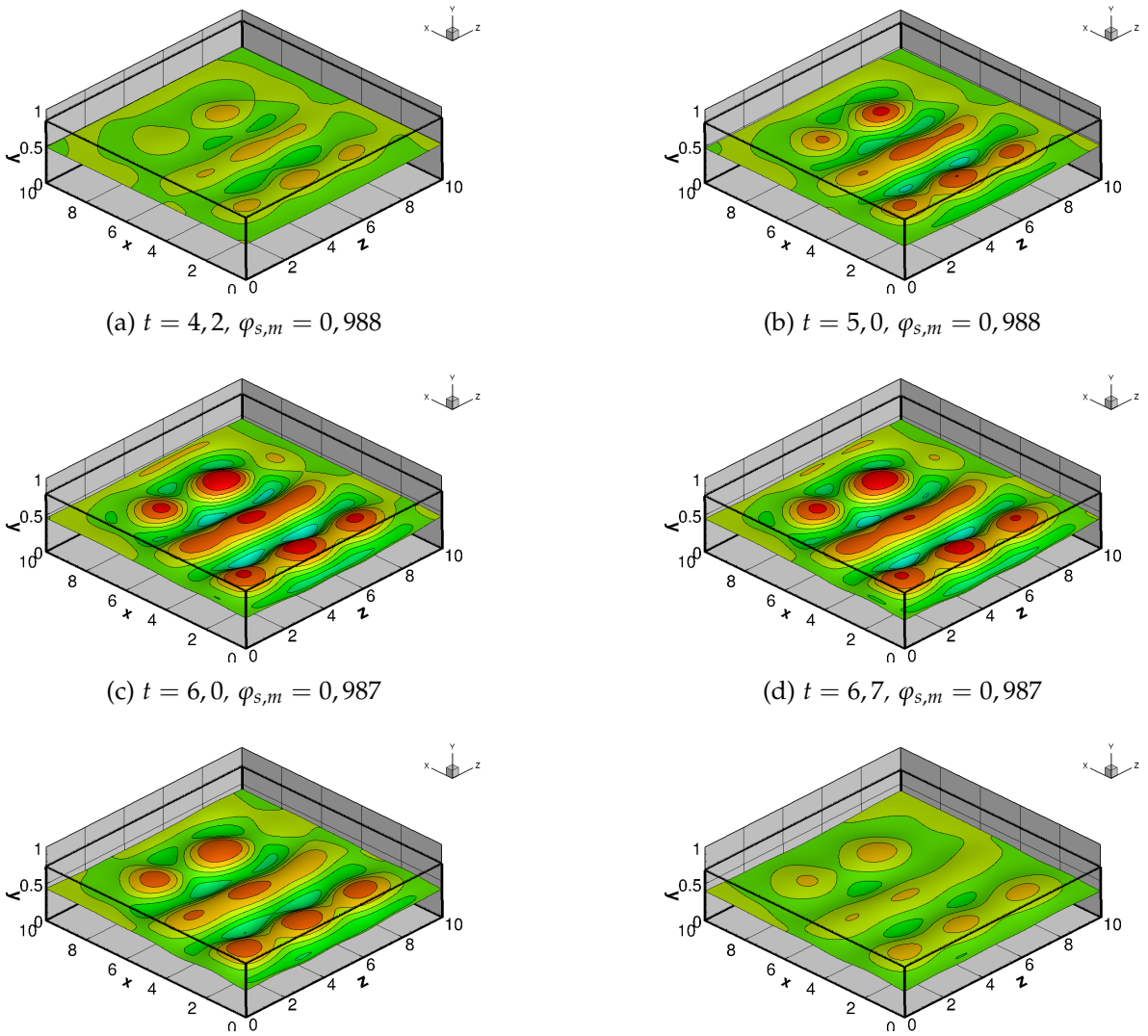
(d) $t = 10$, $\varphi_{s,m} = 0,985$

Figure 4.2 – *Fluctuations du champ de concentration autour de la fraction volumique moyenne $\varphi_{s,m}(t)$ et lignes de courant ψ pour une solution d'épaisseur initiale $e_{init} = 11,5\,\mu m$ et une fraction volumique de polymère $\varphi_p = 0,01$. Les échelles de fraction volumique de solvant et les lignes de courant sont respectivement comprises dans les intervalles $\left[-1,7 \times 10^{-4}; 8,0 \times 10^{-5}\right]$ et $[-0,4; 0,4]$.*

du problème thermique soumis à un échange convectif le long des parois latérales où les cellules naissaient le long des frontières avant de lentement envahir la totalité du film liquide (Fig. 3.2), ici, la convection semble se déclencher loin des parois du récipient ($t = 3$, Fig. 4.2a), puis atteindre très rapidement la totalité du film fluide ($t = 4$, Fig. 4.2b). Sous l'effet du déplacement de l'interface liquide/gaz, les cellules se déforment : Les cellules, qui étaient initialement caractérisées par un rapport, entre leur longueur et la hauteur, voisin de l'unité, évoluent vers une forme rectangulaire où leur rapport de forme croit notablement. Sur les temps plus longs, l'intensité de l'écoulement convectif finit par s'atténuer ($t = 8,50$, Fig. 4.2c). Cette évolution est à attribuer, à la fois à la réduction de l'épaisseur du film et à l'augmentation de la viscosité : les nombres effectifs de Rayleigh et

Marangoni massiques, basés sur l'épaisseur et la viscosité courante, diminuent très fortement ce qui a pour effet d'atténuer les effets moteurs de l'écoulement fluide. Enfin, l'écoulement convectif finit par disparaître et le champ de concentration tend à redevenir diffusif avec des lignes d'iso-fraction volumique quasiment horizontales ($t = 10$, Fig. 4.2d). La valeur élevée du nombre de Schmidt initial $Sc = 1,598 \times 10^4$ explique la très grande sensibilité du champ massique vis-à-vis de l'écoulement : une faible convection engendre une advection importante de la fraction volumique.

Comme pour la situation bidimensionnelle, l'advection du champ massique est importante par rapport à la diffusion ce qui indique que le champ de vitesse vertical des simulations tridimensionnelles est fortement corrélé avec les iso-surfaces de fraction volumique de solvant. La figure 4.3 donne



(a) $t = 4,2$, $\varphi_{s,m} = 0,988$ (b) $t = 5,0$, $\varphi_{s,m} = 0,988$

(c) $t = 6,0$, $\varphi_{s,m} = 0,987$ (d) $t = 6,7$, $\varphi_{s,m} = 0,987$

(e) $t = 7,5$, $\varphi_{s,m} = 0,987$ (f) $t = 8,9$, $\varphi_{s,m} = 0,986$

FIGURE 4.3 – *Iso-surface de la fraction volumique de solvant moyenne $\varphi_s(x, y, z, t) = \varphi_{s,m}(t)$ et les isolignes de la composante verticale de vitesse $v_y \in [-1,2; 0,6]$ ($e_{init} = 1,15 \times 10^{-2}\,mm$, $\varphi_p = 0,01$, $A = 10$)*

l'isosurface de fraction volumique de solvant moyenne $\varphi_{s,m}$ sur laquelle est indiquée des isovaleurs de la composante verticale de la vitesse. Bien que le problème possède de nombreuses symétries vis-à-vis des plans $X = A/2$, $Z = A/2$, $X = Z$ et $X = A - Z$, l'ensemble cellulaire qui se développe dans le film ne respecte aucune de ces propriétés. La raison est simplement due au choix de la condition initiale du champ de solvant qui est basée sur une perturbation spatiale aléatoire. D'autre part, la solution étant intrinsèquement transitoire, les symétries au sein de l'écoulement n'arrivent pas à

émerger avant la fin complète du régime convectif. Malgré cette absence de symétrie, les structures convectives ne se développent pas à des positions totalement quelconques (Fig. 4.3) : elles semblent s'organiser selon un mélange de cellules et de structures allongées (rouleaux) de convection positionnés parallèlement à une des parois latérales du récipient. Comme pour les simulations 2D, la convection s'intensifie d'abord (Figs. 4.3a-4.3d) avant de s'atténuer de sorte à ce que l'écoulement retrouve une situation de repos (Figs. 4.3e-4.3f).

4.2 Influence des paramètres numériques sur les seuils

Dans cette partie, nous nous intéresserons à l'influence du pas de temps et du pas de discrétisation spatial sur les seuils de transition entre une solution diffusive et un écoulement convectif.

Avant de présenter cette étude, il est nécessaire de définir le critère permettant de différencier les deux régimes d'écoulement. Nous suivons la même démarche que celle présentée pour le modèle thermique en section 3.2. Pour cela, nous utilisons le nombre de Péclet massique Pe_{sol} qui n'est rien d'autre que le produit du nombre de Péclet thermique classique par le nombre de Lewis ($Le = \alpha/D$). Pour rester conforme aux travaux précédents, nous définissons un nombre de Péclet massique $Pe_{sol,c}$ qui est une mesure de la vitesse inertielle dans la partie centrale du film fluide, rapportée à la vitesse de diffusion massique :

$$Pe_{sol,c}(t) = \max_{\substack{(x-A/2,y,z-A/2)\in \\ [-1;1]\times[0;\frac{e(t)}{e_{init}}]\times[-1;1]}} \|\overrightarrow{v}(x,y,z,t)\| \times e_{init}/D \quad \text{ou} \quad Pe_c(t) = \max_{\substack{(x-A/2,y)\in \\ [-1;1]\times[0;\frac{e(t)}{e_{init}}]}} \|\overrightarrow{v}(x,y,t)\| \times e_{init}/D \tag{4.2}$$

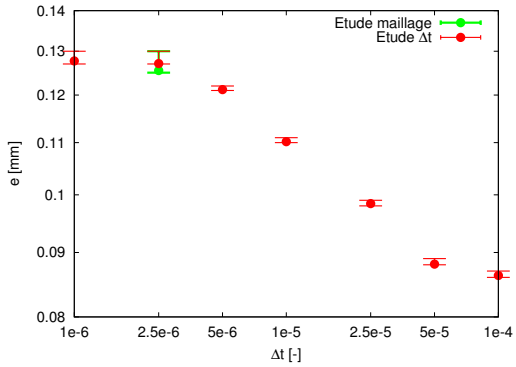
selon que l'approximation est bidimensionnelle ou tridimensionnelle. Il faut noter que l'échelle de vitesse de diffusion est rapportée à l'épaisseur initiale de la solution (référence constante), et non à celle instantanée $e(t) \leq e_{init}$. Ce faisant, nous allons légèrement sous-estimer les épaisseurs critiques par rapport à la définition d'un nombre de Péclet massique construit sur l'épaisseur instantanée.

La solution sera dite convective si ce nombre de Péclet massique dépasse transitoirement l'unité : $\exists t > 0$ tel que $Pe_{sol,c}(t) > 1$. Dans le cas contraire, la solution sera référencée comme diffusive : $\forall t > 0$, $Pe_{sol,c}(t) < 1$. Ainsi, les paramètres de transition permettant de définir le passage d'une solution diffusive à un écoulement convectif vérifient :

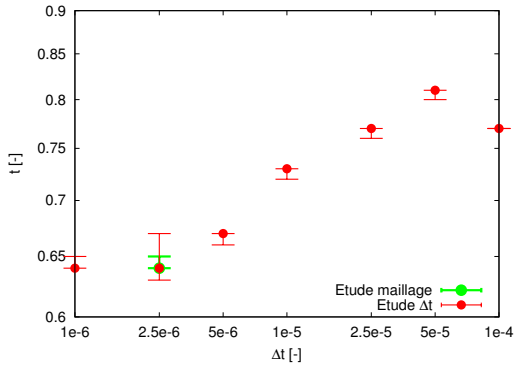
$$\exists t_{cv/d} > 0 \ / \ Pe_{sol,c}(t_{cv/d}) = 1, \ \forall t \neq t_{cv/d}, \ Pe_{sol,c}(t) < 1 \tag{4.3}$$

Les figures 4.4a, c, e et g présentent les influences du pas de temps Δt et du nombre de mailles sur les épaisseurs initiales critiques $e_{init,c}$ définissant la transition entre les régimes diffusif et convectif, pour des simulations 2D, un allongement $A = 10$, une intensité maximale de la perturbation initiale $r = 10^{-3}$, et quatre fractions volumiques de polymère ($\varphi_p = 10^{-1}$, 10^{-2}, 10^{-3} et 10^{-4}) ; les figures 4.4b, d, f et h reportent les temps critiques correspondants. Comme dans le cas thermique (voir Sec. 3.2), la valeur critique est obtenue par un encadrement utilisant deux épaisseurs initiales qui diffèrent aux plus de 1% et pour lesquelles l'une des simulations est purement diffusive ($\forall t > 0$, $Pe_{sol,c}(t) < 1$) et l'autre est convective ($\exists t > 0$ tel que $Pe_{sol,c}(t) > 1$). Les cercles pleins sont des valeurs interpolées à la transition, sur la base des encadrements précédents.

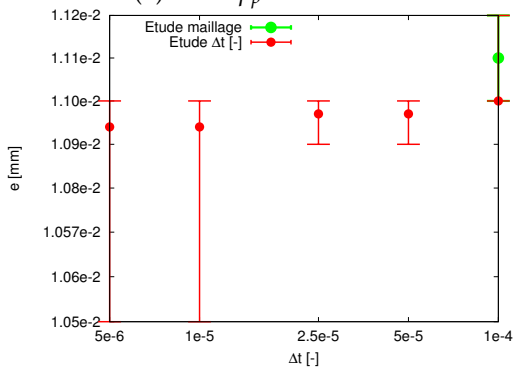
Le nombre de mailles verticales des simulations est $N_y = 50$, avec un rapport de tailles de mailles entre deux cellules adjacentes de 0,95 pour améliorer la représentation de la physique au voisinage de l'interface liquide/gaz. Le nombre de mailles dans la direction horizontale est $N_x = A \times N_y$. Afin de valider la discrétisation spatiale pour chaque fraction de polymère, nous avons choisi le pas de temps à partir duquel le seuil est considéré comme indépendant de Δt et nous avons effectué une nouvelle



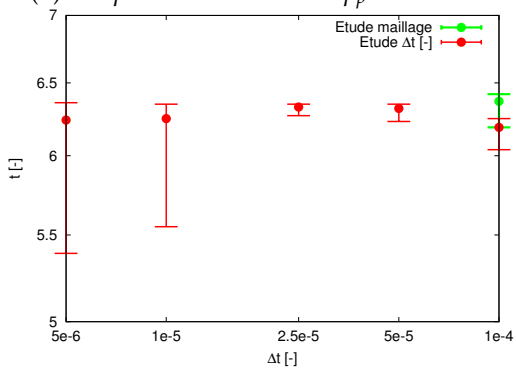
(a) *Seuil* $\phi_p = 1 \times 10^{-1}$



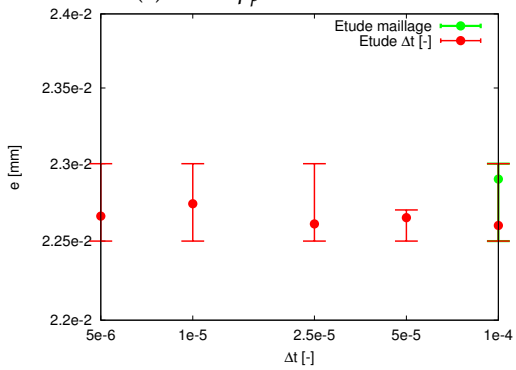
(b) *Temps de déclenchement* $\phi_p = 1 \times 10^{-1}$



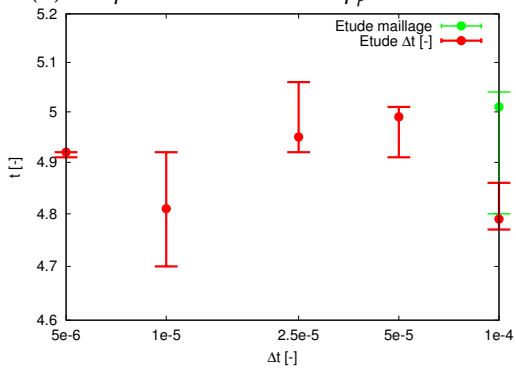
(c) *Seuil* $\phi_p = 1 \times 10^{-2}$



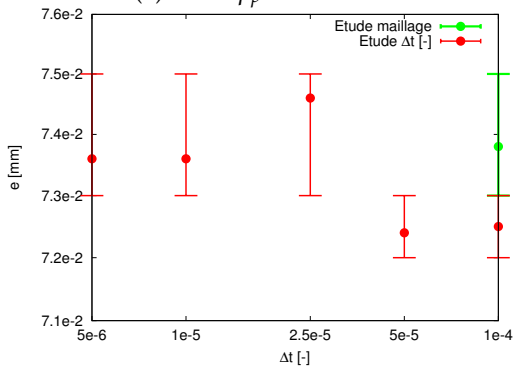
(d) *Temps de déclenchement* $\phi_p = 1 \times 10^{-2}$



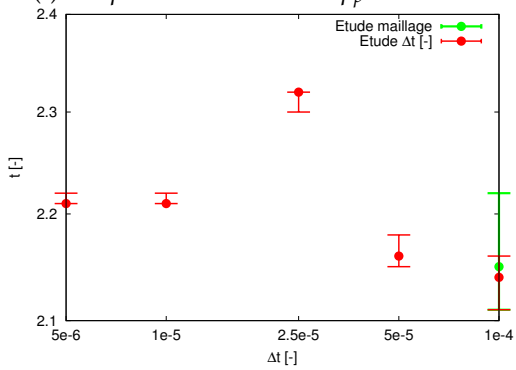
(e) *Seuil* $\phi_p = 1 \times 10^{-3}$



(f) *Temps de déclenchement* $\phi_p = 1 \times 10^{-3}$



(g) *Seuil* $\phi_p = 1 \times 10^{-4}$



(h) *Temps de déclenchement* $\phi_p = 1 \times 10^{-4}$

FIGURE 4.4 – *Étude des seuils et des temps de déclenchement pour les différents pas de temps et maillages*

détermination des seuils pour un maillage plus fin ($N_y = 100$ et $N_x = A \times N_y$), tout en conservant le même coefficient de raffinement. Les pas des discrétisations spatiales et temporelles sont considérés

comme suffisamment petits, si l'épaisseur critique varie de moins de 5% par rapport à celle obtenue avec le maillage ou le pas de temps le plus fin. Bien que cette validation n'ait été utilisée que sur les épaisseurs seuils, il se trouve que les temps associés à la transition respectent généralement cet écart relatif.

Pour une fraction volumique de polymère $\varphi_p = 10^{-1}$, nous observons une forte dépendance avec le pas de temps Δt, à la fois de l'épaisseur critique (Fig 4.4a) et du temps de déclenchement (Fig 4.4b). Ces deux grandeurs semblent converger pour $\Delta t \leq 2,5 \times 10^{-6}$. Le doublement du maillage indique une très légère sensibilité des résultats à la grille de discrétisation. Cette faible sensibilité est négligeable compte tenu du fait que le changement de maillages contribue à modifier la structure spatiale et la perturbation imposée à l'instant initial. Ainsi, il s'avère illusoire d'essayer d'obtenir des valeurs convergées avec précision lorsque le germe de déstabilisation de la solution diffusive transitoire repose sur des quantités non déterministes. Pour les trois autres fractions volumiques de polymère $\varphi_p = 10^{-2}$, 10^{-3} et 10^{-4} (Figs 4.4c, e et g), l'étude de l'épaisseur initiale critique indique que le pas de temps le plus grand et le maillage $N_y = 50$ est suffisant pour bien capter la transition entre la solution diffusive et l'écoulement convectif. Le tableau 4.1 récapitule les paramètres numériques issus de l'étude du maillage et du pas de temps.

φ_p	Pas de temps Δt	Maillage N_y
10^{-1}	$2,5 \times 10^{-6}$	50
10^{-2}	10^{-4}	50
10^{-3}	10^{-4}	50
10^{-4}	10^{-4}	50

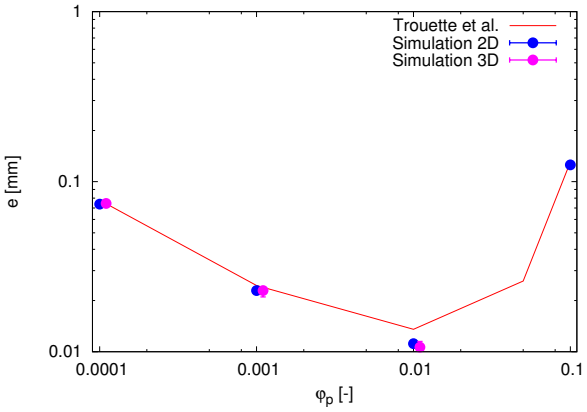
Table 4.1 – *Pas de temps Δt et nombre de mailles verticales N_y utilisés pour les simulations 2D ($N_x = A \times N_y$) et 3D ($N_x = N_z = A \times N_y$) pour 4 fractions volumiques de polymères $\varphi_p = 10^{-1}$, 10^{-2}, 10^{-3} et 10^{-4}.*

4.3 Étude des seuils de transition convectif/diffusif

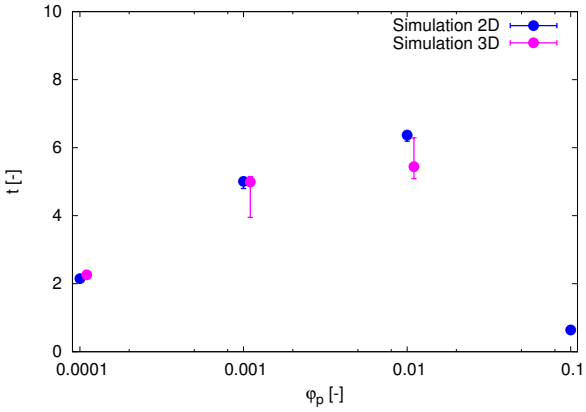
A la différence du Chapitre 3, où nous avons eu principalement recours à une déstabilisation du champ de température à l'aide d'un échange thermique convectif aux parois latérales, nous procédons ici à la recherche des seuils de transition convectif/diffusif en utilisant une perturbation aléatoire du champ de concentration initial avec $r = 10^{-3}$. Les simulations ont été effectuées pour des configurations bidimensionnelles et tridimensionnelles, en se basant sur les pas de temps et les maillages indiqués dans le tableau 4.1.

Nous présentons en figure 4.5 les épaisseurs initiales e_{init} et les temps d'apparition de la convection $t_{cv/d}$ pour des simulations bidimensionnelles et tridimensionnelles, en fonction de la fraction volumique de polymère φ_p et un allongement $A = 10$. Les barres verticales indiquent les encadrements des valeurs critiques et les cercles pleins en donnent une interpolation. Hormis sur la figure 4.5b où des intervalles sont nettement visibles sur les temps de transition pour les simulations tridimensionnelles avec $\varphi_p = 10^{-3}$ et 10^{-2}, les autres encadrements sont inférieurs à la taille des symboles représentant les valeurs seuils interpolées. Compte tenu du pas de temps très faible nécessaire pour réaliser des calculs avec $\varphi_p = 10^{-1}$ (Tab. 4.1), l'encadrement de l'épaisseur critique pour des simulations tridimensionnelles n'a pu être menée à bien en raison d'un coût de calcul trop important. Les valeurs numériques des valeurs interpolées ainsi que celles issues des travaux de Trouette et al. [58] sont reportées dans le tableau 4.2.

Les épaisseurs critiques initiales obtenues lors des simulations bidimensionnelles et tridimensionnelles présentent des écarts relatifs faibles. Ils vont de $0,01\%$ pour une fraction volumique de polymère $\varphi_p = 10^{-3}$ à $5,35\%$ pour $\varphi_p = 10^{-2}$. Ce constat nous amène à penser que le modèle bidimensionnel est à même de décrire l'apparition de la convection au sein du film fluide, du moins



(a) *Épaisseur initiale critique pour la transition convectif/diffusif*



(b) *Temps d'apparition de la transition convection/diffusion à l'épaisseur critique initiale*

FIGURE 4.5 – *Détermination des épaisseurs initiales critiques et des temps d'apparition de la convection pour des simulations 2D et 3D pour un allongement $A = 10$ et des perturbations aléatoires comprises entre $\pm 0,5 \times 10^{-3}$. Les points bleus (resp. roses) désignent les seuils interpolés bidimensionnels (resp. tridimensionnels) et la ligne rouge indique les résultats des seuils obtenus par Trouette et al. [58] pour un modèle bidimensionnel.*

φ_p	Dimension de l'espace	Épaisseur initiale seuil $e_{init,c}$ (μm) Interpolation (écart relatif à [58])	[58] (2D)	Temps de déclenchement interpolé pour l'épaisseur critique ($t_{cv/d}$)
10^{-1}	2D	126 (3,08%)	130	0,64
10^{-2}	2D	11,2 (17,6%)	13,6	6,37
10^{-3}	2D	22,9 (6,53 %)	24,5	5,01
10^{-4}	2D	73,8 (5,14%)	77,8	2,15
10^{-1}	3D	–	–	–
10^{-2}	3D	10,6	–	5,44
10^{-3}	3D	22,9	–	4,99
10^{-4}	3D	74,5	–	2,26

TABLE 4.2 – *Synthèse des épaisseurs initiales critiques pour la transition convectif/diffusif et temps d'apparition de la convection pour un allongement $A = 10$ et une amplitude maximale de perturbation aléatoire $r = 10^{-3}$.*

lorsque celle-ci est engendrée par une condition initiale aléatoire. Nos résultats sont également en bon accord avec ceux de Trouette et al. [58] qui ont été obtenus sous une approximation bidimensionnelle et un nombre de Péclet massique, non pas construit sur la vitesse maximale dans la région centrale du film liquide, mais sur la norme L_2 de la vitesse sur l'ensemble de la solution fluide (ligne continue rouge sur la figure 4.5a). Les écarts varient de quelques pour cents à 17,6% pour $\varphi_p = 10^{-2}$. Il est intéressant de remarquer que cet écart maximal est atteint pour l'épaisseur critique la plus faible en fonction de φ_p (Fig. 4.5a). La présence d'un minimum dans la courbe de variation de l'épaisseur critique en fonction de φ_p s'explique assez bien en examinant les comportements asymptotiques [20] :

— si la fraction volumique de polymère tend vers zéro, il est évident qu'aucune déstabilisation du problème diffusif ne peut avoir lieu : les inhomogénéités à l'origine du terme moteur ont disparu. L'épaisseur critique tend donc vers l'infini lorsque φ_p s'approche de 0.

— si la fraction volumique de solvant diminue beaucoup, la viscosité du mélange va très fortement augmenter, amortissant par diffusion toute vélléité de croissance des perturbations. Pour contrecarrer la diffusion visqueuse, il faut accroître très fortement l'épaisseur initiale de sorte que les nombres de Marangoni et Rayleigh massiques soient suffisamment grands pour engendrer une déstabilisation.

Comme indiqué dans le tableau 4.2, les épaisseurs critiques initiales sont très faibles, entre la dizaine et la centaine de micromètres, et elles diminuent au cours du temps. Ainsi, le rapport des

vitesses initiales engendrées par la contribution d'Archimède, $\sqrt{g\beta_m \Delta\varphi_s e_{init}}$, et la tension de surface, $\sqrt{(\partial\gamma)/(\partial\varphi_s) \times \Delta\varphi_s/(\rho e_{init})}$, s'écrit $\sqrt{\rho g \beta_m e_{init}^2/((\partial\gamma)/(\partial\varphi_s))}$ et varie entre $\approx 0,003$ et $\approx 0,03$. La vitesse produite par la poussée d'Archimède est donc généralement négligeable, ce qui implique que l'écoulement est essentiellement piloté par les seules contributions de tension de surface (écoulement de Bénard-Marangoni). Nous allons maintenant quantifier les évolutions des épaisseurs critiques et les temps de déclenchement de la convection $t_{cv/d}$, en fonction de l'augmentation de la fraction volumique de polymère. Nous examinerons particulièrement les variations du nombre de Marangoni massique défini dans le tableau 2.3, en utilisant l'expression du Péclet d'interface Pe_{int} et celle de $\Delta\varphi_s$ donnée dans l'équation (2.37) :

$$Ma_{sol} = \frac{-\frac{\partial\gamma}{\partial\varphi_s} e_{init}^2 v_{evap} \varphi_p(t=0)}{\mu_{init} D^2} \equiv K \frac{e_{init}^2 \varphi_p(t=0)}{\mu_{init}} \tag{4.4}$$

avec $K = 162\, kg/(mm^3.s)$.

1. Lorsque la fraction volumique de polymère augmente de 10^{-4} à 10^{-3}, la viscosité initiale du fluide reste quasiment constante (+1%). Comme le montre le tableau 4.2 et la figure 4.5a, l'épaisseur critique a une diminution de l'ordre de 70% (d'un facteur $3,2$), ce qui compense parfaitement l'augmentation d'un facteur 10 de la fraction volumique : Le nombre de Marangoni (4.4) reste donc quasiment constant. Bien que ce nombre ne change pas, le temps de déclenchement correspondant à l'instant de la transition diffusif/convectif se trouve substantiellement retardé d'environ 133% (Fig. 4.5b et tab. 4.2).
2. L'augmentation de la fraction volumique de polymère de 10^{-3} à 10^{-2} provoque une augmentation non négligeable de 122% de la viscosité initiale (d'un facteur $2,23$) qui se trouve encore compensée par la diminution de $\approx 50\%$ de l'épaisseur : Globalement, le nombre de Marangoni massique reste encore inchangé à la transition. Comme précédemment, la valeur de $t_{cv/d}$ est de-nouveau décalée, mais seulement de 27%.
3. Le passage d'une fraction volumique de polymère de 10^{-2} à 10^{-1} multiplie la viscosité par un facteur 233. Pour conserver le même ordre de grandeur pour le nombre de Marangoni, l'épaisseur devrait donc être multipliée par environ $4,8$. D'après le tableau 4.2, l'épaisseur augmente d'un facteur 11, ce qui est bien supérieur à ce qui était attendu. L'explication de cet accroissement de l'épaisseur est probablement due à l'évolution de la viscosité dans la solution : Les variations spatiales et temporelles de la viscosité seront d'autant plus importantes que la fraction volumique initiale de polymère sera élevée (voir tab. 2.1). Ainsi, l'épaisseur obtenue pour un nombre de Marangoni constant est sous-évaluée car l'expression de ce paramètre sous-estime le rôle stabilisateur de la viscosité. Peut-être faudrait-il introduire une viscosité effective qui tienne compte de son évolution temporelle et de sa répartition spatiale ? Pratiquement, le nombre de Marangoni massique à la transition est désormais augmenté d'un facteur proche de $5,2$. Cette accroissement de Ma_{sol} se traduit par un temps de déclenchement très précoce, 9 fois plus faible que pour $\varphi_s = 10^{-2}$.

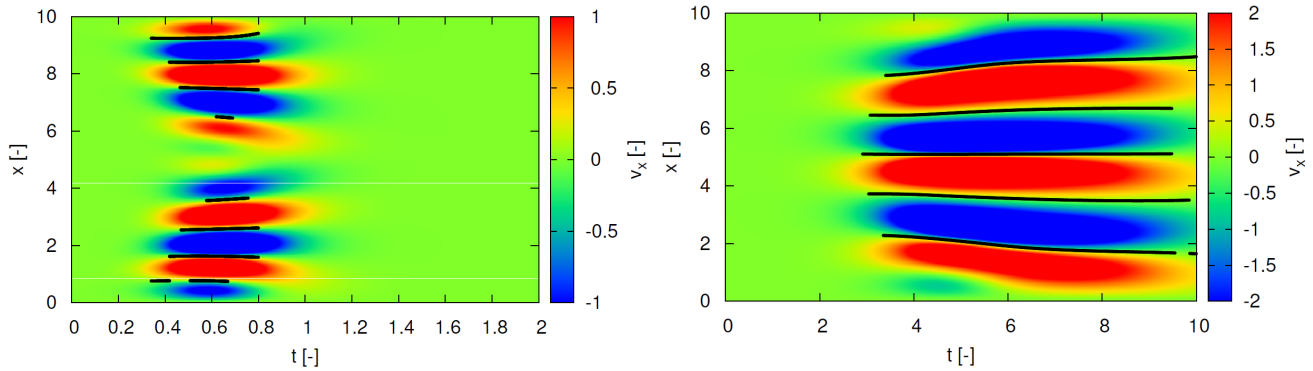
En résumé, le nombre de Marangoni massique à la transition est constant pour les faibles valeurs de la fraction volumique de polymère ($\varphi_p \leq 0,01$), et le temps correspondant à la transition convectif/diffusif $t_{cv/d}$ croît de moins en moins vite avec l'augmentation de φ_p. Pour les fractions de polymères plus élevées, le rôle stabilisateur de la viscosité devrait être mieux évalué pour construire un nombre de Marangoni massique indépendant de φ_p. L'expression actuelle de Ma_{sol} (Eq. (4.4)) augmente avec la fraction volumique de polymère et le temps diminue.

4.4 Genèse en espace et en temps des cellules convectives

Dans cette section, nous allons étudier le développement des cellules de convection ($Pe_{sol} > 1$) pour des simulations bidimensionnelles et tridimensionnelles. Ce travail repose sur les mêmes outils que ceux développés dans le chapitre consacré aux écoulements du modèle thermique. Nous examinerons l'évolution des cellules convectives en nous appuyant, soit sur des diagrammes espace-temps de la vitesse horizontale à la surface libre pour les simulations 2D (Sec. 3.5, page 47), soit sur des reconstructions utilisant un algorithme de Voronoï basé sur les minimas locaux de fraction volumique de solvant pour les simulations 3D (Sec. 3.6.1, page 60). Nous terminerons cette partie par quelques comparaisons portants sur les structures cellulaires qui apparaissent en 2D et 3D.

4.4.1 Évolution de l'écoulement convectif pour des écoulements 2D : Diagrammes espace-temps

La figure 4.6 présente deux diagrammes espace/temps pour les fractions volumiques de poly-



(a) $e_{init} = 122\,\mu m$, $\varphi_p = 0,1$ (b) $e_{init} = 11,5\,\mu m$, $\varphi_p = 0,01$

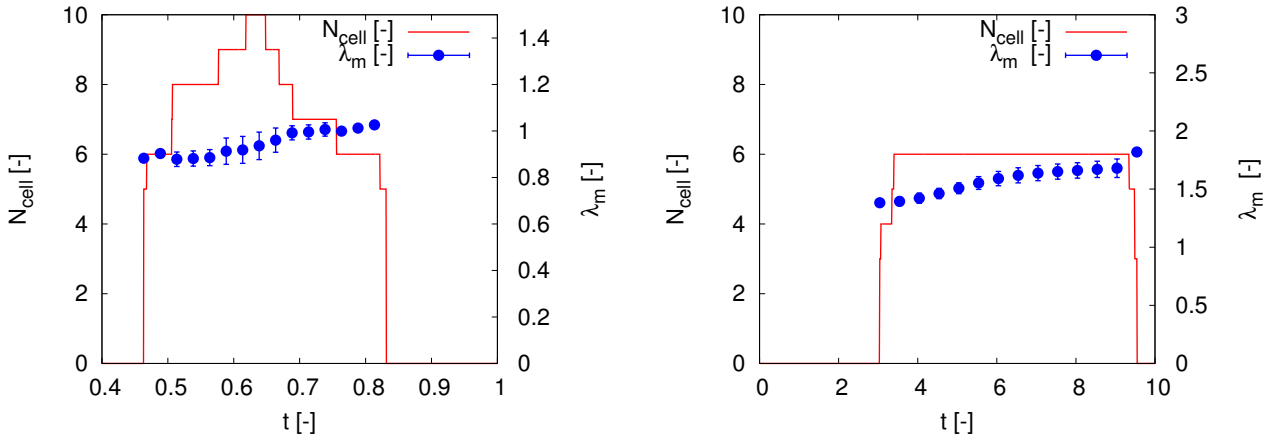
Figure 4.6 – *Diagramme espace-temps des vitesses longitudinales à la surface libre pour un allongement $A = 10$ et une amplitude maximale des perturbations aléatoires de $r = 10^{-3}$. Les épaisseurs sont choisies très proches des valeurs seuils.*

mère $\varphi_p = 0,1$ et $0,01$ et des épaisseurs initiales légèrement supérieures à celles déterminées aux seuils de transition (Tab. 4.2). Dans chacun des deux cas, nous constatons que les cellules convectives apparaissent quasi-simultanément dans l'écoulement. Ce comportement est tout à fait conforme aux observations que nous avions menées dans le cadre des écoulements simulés avec le modèle thermique, aux parois adiabatiques et aux conditions initiales aléatoires sur le champ thermique (voir Sec. 3.5.6.1, page 57). C'est la nature aléatoire de la perturbation initiale sur l'ensemble du champ (thermique ou massique) qui engendre simultanément des germes de déstabilisation dans la totalité du film liquide.

La comparaisons des diagrammes 4.6a et 4.6b montre que la fraction de polymère joue un rôle essentiel dans le temps de déclenchement de la convection, ainsi que dans la durée de celle-ci. Graphiquement, le temps de déclenchement est 10 fois plus court pour $\varphi_p = 0,1$ que pour $\varphi_p = 0,01$, ce qui est parfaitement conforme aux valeurs obtenues dans la section précédente pour la détermination des seuils de transition (Tab. 4.2). En plus de naître précocement, le temps de subsistance de cette convection est extrêmement faible par rapport à $\varphi_p = 0,01$. Il est intéressant de remarquer que la multiplication par 10 de la fraction de polymère réduit à la fois le temps de déclenchement de la convection, et également sa durée (homothétie d'un facteur 1/10 de l'échelle temps). Ce rapport de 10 est exactement le ratio entre les nombres de Péclet d'interface obtenus pour $\varphi_p = 0,1$ et $\varphi_p = 0,01$: La vitesse de descente de l'interface, rapportée à la vitesse de diffusion massique, est donc dix fois plus rapide. Sachant que la diminution de l'épaisseur du film liquide a un rôle stabilisant sur la convection, cela semblerait indiquer que la durée de présence des cellules convec-

tives est fortement corrélée au nombre de Péclet d'interface, du moins pour les grandes valeurs de φ_p.

En utilisant les diagrammes espace-temps de la figure 4.6, nous pouvons extraire le nombre de cellules convectives ($Pe_{sol} \geq 1$) ainsi que leur taille moyenne (Fig. 4.7). La procédure suivie pour



(a) $e_{init} = 122\,\mu m$, $\varphi_p = 0,1$ (b) $e_{init} = 11,5\,\mu m$, $\varphi_p = 0,01$

FIGURE 4.7 – *Évolutions du nombre de cellules convectives N_{cell} et de leur taille moyenne λ_m pour un allongement $A = 10$ et une amplitude maximale des perturbations aléatoires de $r = 10^{-3}$. Les incertitudes mentionnées sur les tailles des cellules représentent la dispersion des valeurs (écart type).*

obtenir ces informations est détaillée dans la section dédiée au modèle thermique, dans la section 3.5.4, page 52. Nous prenons en compte les cellules de bord. L'examen rapide des deux graphes confirme naturellement les résultats qualitatifs tirés des diagrammes, c'est-à-dire que les cellules convectives

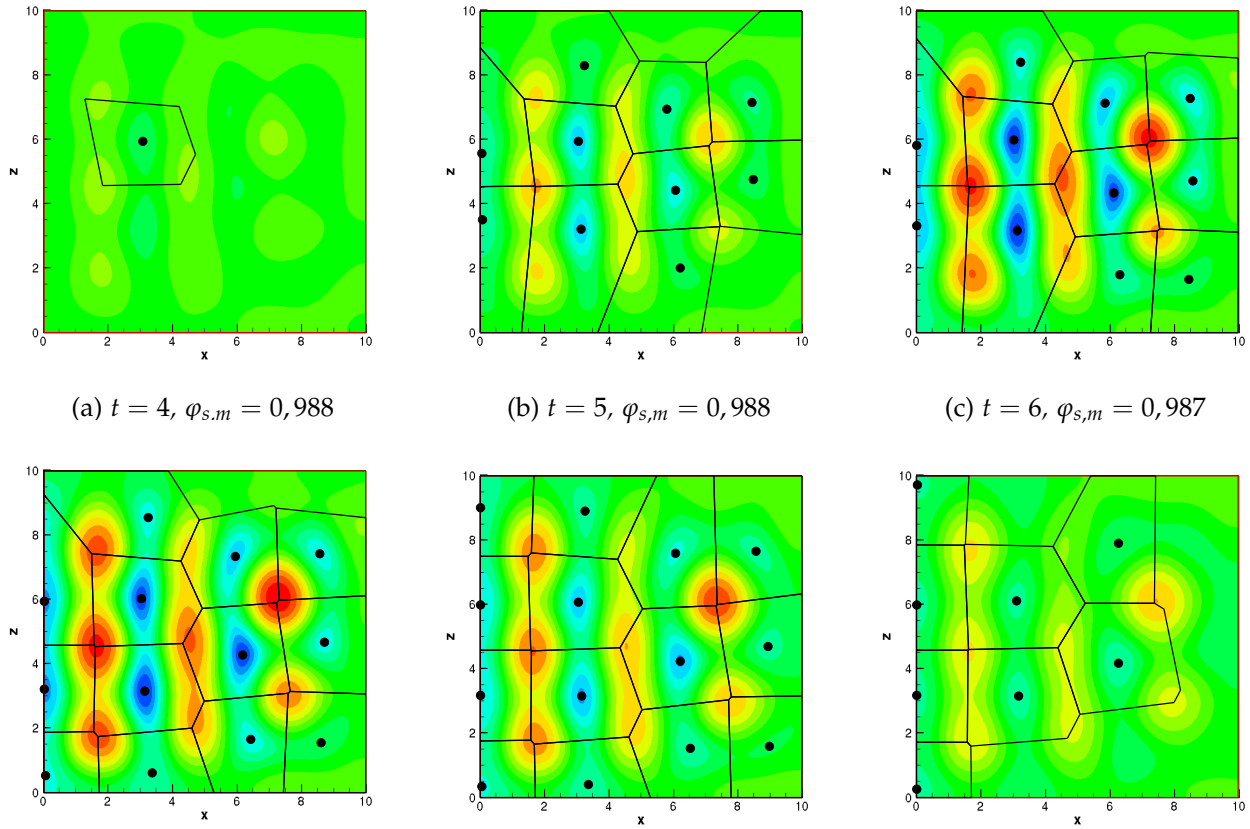
1. apparaissent de façon quasi-simultanée ;
2. émergent à des temps 10 fois plus court pour $\varphi_p = 0,1$ par rapport à $\varphi_p = 0,01$;
3. sont actives sur des temps 10 fois plus court pour $\varphi_p = 0,1$ par rapport à $\varphi_p = 0,01$.

Lorsque $\varphi_p = 0,01$ (Fig. 4.7b), le nombre de cellules reste quasiment constant durant toute leur durée de vie, avec un nombre de 6 structures. Au cours du temps, leur taille augmente jusqu'à occuper pleinement la totalité du film liquide : le produit du nombre de cellules ($N_{cell} = 6$) par leur taille ($\lambda_m \approx 1,6$ pour $t \approx 9$) donne approximativement l'allongement $A = 10$. Il est intéressant de noter que les structures engendrées ont une longueur caractéristique λ_m supérieure à l'épaisseur initiale de la solution. Pour $\varphi_p = 0,1$ (Fig. 4.7a), le nombre de cellules convectives varie fortement au cours du temps : 6 cellules apparaissent d'abord simultanément, puis d'autres viennent régulièrement s'ajouter pour finalement atteindre un maximum de 10 cellules, avant que ce nombre ne diminue pour retrouver la valeur de 6 et finalement brusquement tendre vers zéro. Sur l'ensemble de la durée d'existence de ces cellules convectives, leur taille λ_m reste de l'ordre de l'unité, avec une légère tendance à l'augmentation au cours du temps. Ainsi, seule la période temporelle où le nombre de cellules est maximal, égal à 10, permet aux cellules convectives d'occuper la totalité du film fluide. Malgré la diminution de l'épaisseur du film fluide d'environ 1/3 à l'instant de disparition des cellules convectives, les longueurs moyennes λ_m pour les deux fractions volumiques de polymère étudiées ne diminuent aucunement au cours du temps ; elles auraient plutôt tendance à légèrement augmenter de taille.

4.4.2 Développement des cellules convectives à la surface libre pour un écoulement tridimensionnel, $\varphi_p = 0,01$ et $e_{init} = 11,5\,\mu m$

Nous allons étudier le développement des écoulements pour une simulation numérique tridimensionnelle, avec une fraction volumique de polymère $\varphi_p = 0,01$ et une épaisseur initiale $e_{init} = 11,5\,\mu m$. Pour réaliser cette étude, nous allons examiner le champ massique à la surface libre, et à l'aide d'une reconstruction des structures convectives par un algorithme de Voronoï (voir Sec. 3.6.1, page 60), nous pourrons caractériser les écoulements au cours du temps. Ensuite nous effectuerons une comparaison avec la simulation 2D effectuée avec les mêmes paramètres pour voir si la dimensionnalité de la simulation est un critère déterminant pour comprendre les écoulements fluides.

La figure 4.9 présente l'évolution de la fluctuation du champ de fraction volumique autour de $\varphi_{s,m}$



(a) $t = 4$, $\varphi_{s.m} = 0,988$ (b) $t = 5$, $\varphi_{s,m} = 0,988$ (c) $t = 6$, $\varphi_{s,m} = 0,987$

(d) $t = 7$, $\varphi_{s,m} = 0,987$ (e) $t = 8$, $\varphi_{s,m} = 0,986$ (f) $t = 9$, $\varphi_{s,m} = 0,985$

FIGURE 4.8 – *Reconstruction des cellules convectives à la surface libre, superposée à la fluctuation de fraction volumique de solvant autour de $\varphi_{s,m}$ ($[-3 \times 10^{-5}; 3 \times 10^{-5}]$), pour une épaisseur $e = 11,5\,\mu m$ et un allongement $A = 10$. Les symboles • indiquent les cellules convectives.*

ainsi que la reconstruction des cellules convectives. Nous rappelons que le qualificatif de convectif s'applique s'il existe au moins un point dans la cellule pour lequel le nombre de Péclet massique à la surface libre est supérieur ou égale à 1 ; si cette condition n'est pas satisfaite, la reconstruction de Voronoï n'est pas représentée sur le graphique. Simultanément, nous examinerons l'évolution du nombre de structures convectives issues de cette reconstruction, ainsi que leur taille moyenne λ_{cell} définie par la relation (3.5) (Fig. 4.9). Par construction, λ_{cell} représente une structure torique qui, si nous regardons une section droite à ce tore, engendre un couple de cellules contrarotatives dans un plan bidimensionnel. Autrement dit, les comparaisons des tailles caractéristiques 2D et 3D devront intégrer le facteur de deux entre les valeurs 2D et 3D.

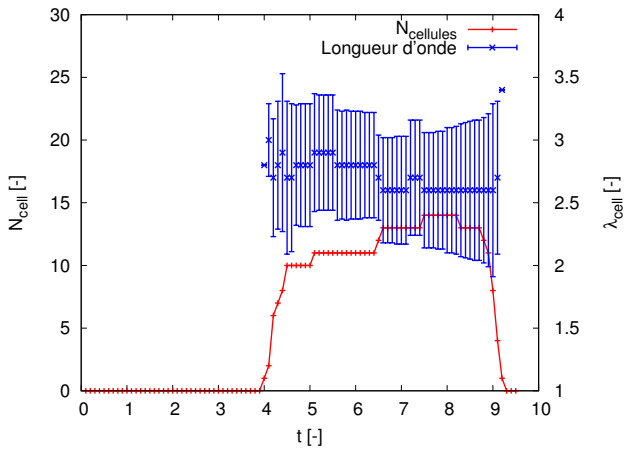


FIGURE 4.9 – *Évolution du nombre de cellules convectives reconstruites au niveau de l'interface libre pour une épaisseur* $e_{init} = 11,5\,\mu m$ *et un allongement* $A = 10$

L'apparition de la première cellule convective se fait pour un temps voisin de $t = 4$ (Fig. 4.8a et Fig. 4.9), c'est-à-dire légèrement plus tardivement que pour la simulation bidimensionelle pour laquelle nous avions obtenu $t = 3$ (Fig. 4.7b). D'après le graphe 4.9, les cellules se développent et s'intensifient ensuite très rapidement pour atteindre différents paliers situés entre 10 et 14 cellules (Figs. 4.8b-4.8e) avant de s'atténuer et finir par disparaître rapidement (Fig. 4.8f) pour $t \approx 9$, un temps voisin de celui relevé en 2D avec $t \approx 9,5$. Si maintenant nous comparons les tailles des cellules 2D, $1,4 \leq \lambda_m < 1,6$ (Fig. 4.7b), et celles des structures 3D, $2,5 \leq \lambda_{cell} \leq 2,7$ (Fig. 4.9), nous constatons que les structures convectives tridimensionnelles sont légèrement inférieures à un couple de cellules contrarotatives de longueur $2\lambda_m$. Compte tenu de la dispersion des valeurs obtenues lors des simulations 3D et de la différence des définitions de la taille des structures pour λ_m et λ_{cell}, les tailles des cellules convectives 2D et 3D sont donc en relativement bon accord.

En conclusion, bien que les simulations bidimensionnelles ne soient pas aptes à donner la forme des cellules de convection, il semble cependant que ces calculs permettent de rendre compte

1. avec précision des seuils de transition entre une solution diffusive et un écoulement convectif 3D ;
2. du temps d'apparition des cellules convectives, ainsi que leur fin ;
3. relativement correctement de la taille caractéristique des cellules de convection.

5 Naissance de la convection dans un modèle couplé thermique/massique d'évaporation

Sommaire

5.1 Illustration des écoulements lors du couplage thermique/massique 87
5.2 Influence des paramètres numériques 90
5.2.1 Choix du pas de temps 90
5.2.2 Maillage 91
5.3 Identification des seuils de transition thermiques et massiques 92
5.3.1 Étude de la déstabilisation de la solution diffusive 92
5.3.2 Délimitation des régimes convectifs thermique et massique 93
5.3.3 Seuils de transition du modèle couplé : régimes thermique et massique 94
5.4 Analyse en espace et en temps des écoulements 2D 96
5.4.1 Régime thermique 96
5.4.2 Régime massique 97
5.4.3 Régime couplé thermique et massique 98
5.5 Cellules convectives 3D à la surface libre : régime couplé thermique et massique 99
5.5.1 Convection thermique 100
5.5.2 Convection massique 102

Dans ce chapitre, nous décrirons les résultats des simulations couplant les transferts massique et thermique pour une solution de Polyisobutylène-Toluène contenue dans un récipient de base carrée, délimité par un fond adiabatique S_{inf} et des parois latérales diathermes S_{lat}. La solution est mise en contact avec l'air environnant à travers une interface notée S_{sl}. A l'instant initial, le film fluide d'épaisseur e_{init} est au repos et à température ambiante. L'évaporation à la surface libre, combinée aux transferts thermiques convectifs aux parois latérales, pourra engendrer un écoulement, piloté sur les temps courts par les transferts thermiques, puis plus tard par les transferts massiques. Dans ces simulations, la viscosité varie dans l'espace et évolue au cours du temps. Comme dans le modèle massique pur, l'interface est mobile mais indéformable. L'épaisseur dimensionnelle instantanée du film fluide s'écrit

$$e(t) = e_{\text{init}} - v_{\text{evap},l} \times t$$

Pour décrire les écoulements couplés, nous utiliserons les échelles de vitesse et de temps issues du modèle massique (D/e_{init} et e_{init}^2/D). Comme dans le cas thermique, un échange thermique convectif a lieu le long des parois latérales qui a pour effet d'engendrer, éventuellement, un écoulement

convectif au centre du film liquide. Pour que la convection induite par la contribution massique soit perceptible par rapport à celle d'origine thermique, il est nécessaire de réduire l'intensité induite par les apports de chaleur à travers les frontières latérales. Pour cela, nous avons fortement réduit le coefficient d'échange thermique convectif qui est passé d'une valeur de $h_{lat} = 10\,W/(m^2.K)$ à $h_{lat} = 0,001\,W/(m^2.K)$ (augmentation de la résistance thermique de la paroi).

La figure 5.1 synthétise la géométrie et les conditions aux limites adimensionnelles appliquées au film liquide.

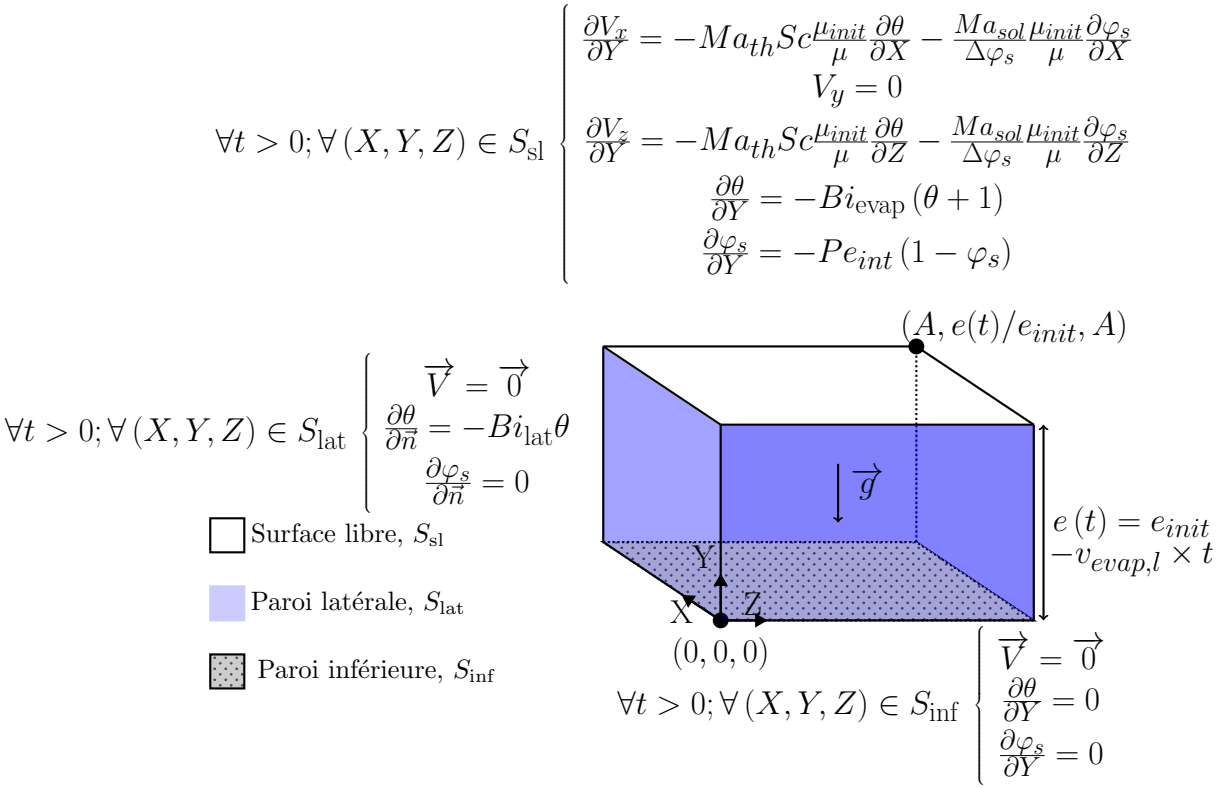
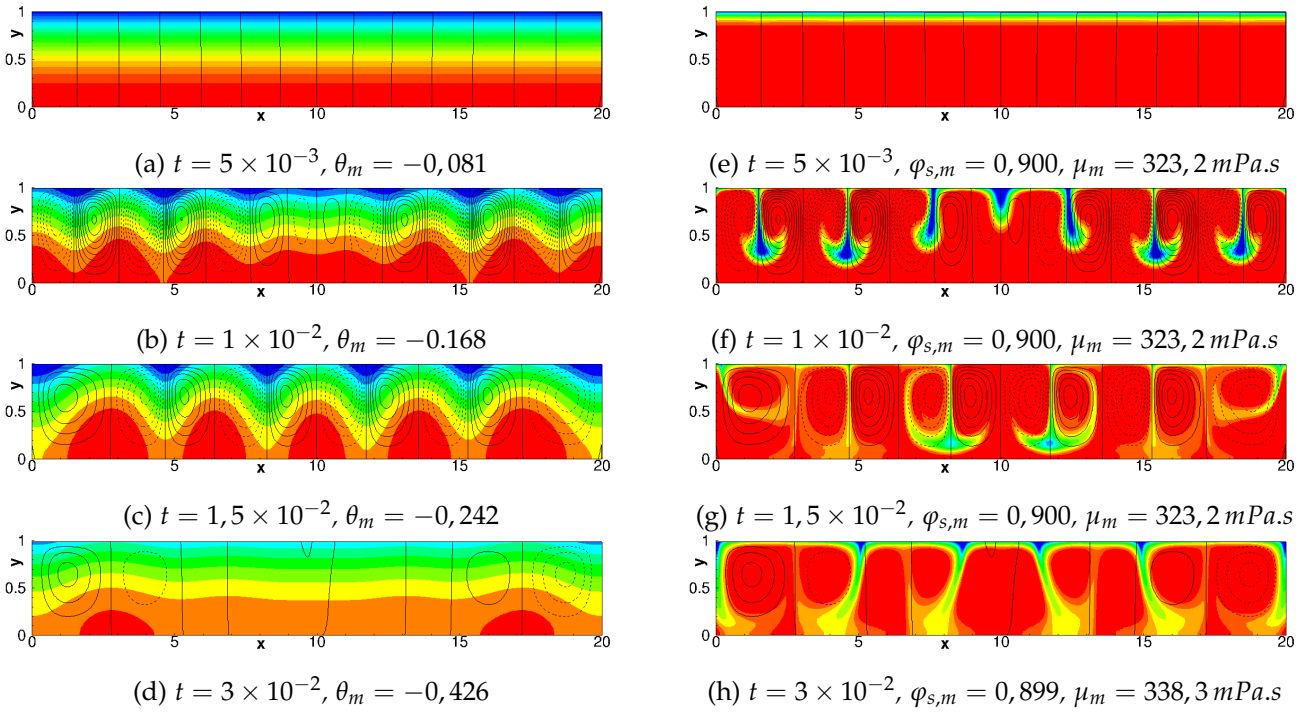


FIGURE 5.1 – *Schéma du dispositif pour une simulation couplée thermique/massique. Les échelles de vitesse et de temps sont issues du modèle massique (D/e_{init} et e_{init}^2/D).*

5.1 Illustration des écoulements lors du couplage thermique/massique

Nous présentons dans cette section deux exemples d'écoulements. Chacun d'eux est réalisé pour la même fraction volumique initiale de polymère de $\varphi_p = 0,1$ et un allongement $A = 20$. Le premier résulte d'une simulation bidimensionnelle d'un film fluide d'épaisseur initiale $e_{init} = 100\,\mu m$, tandis que le second exemple porte sur une simulation tridimensionnelle pour une épaisseur légèrement plus faible, $e_{init} = 84\,\mu m$. Pour chacun de ces deux écoulements, nous examinerons les évolutions des champs thermiques et massique, ainsi que la variation de la composante verticale de vitesse dans l'espace et le temps.

Examinons d'abord la simulation bidimensionnelle pour une épaisseur initiale $e_{init} = 100\,\mu m$. La figure 5.2 donne l'évolution des fluctuations de température et de fraction volumique de solvant



(a) $t = 5 \times 10^{-3}$, $\theta_m = -0,081$

(b) $t = 1 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0.168$

(c) $t = 1,5 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,242$

(d) $t = 3 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,426$

(e) $t = 5 \times 10^{-3}$, $\varphi_{s,m} = 0,900$, $\mu_m = 323,2\,mPa.s$

(f) $t = 1 \times 10^{-2}$, $\varphi_{s,m} = 0,900$, $\mu_m = 323,2\,mPa.s$

(g) $t = 1,5 \times 10^{-2}$, $\varphi_{s,m} = 0,900$, $\mu_m = 323,2\,mPa.s$

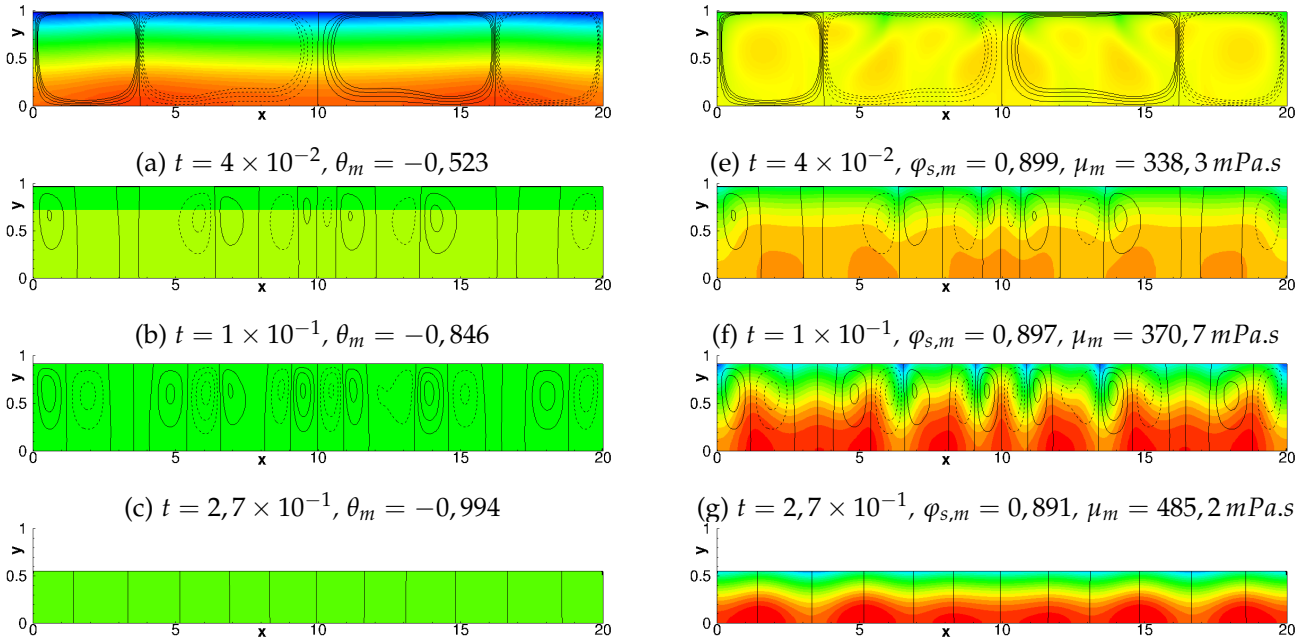
(h) $t = 3 \times 10^{-2}$, $\varphi_{s,m} = 0,899$, $\mu_m = 338,3\,mPa.s$

Figure 5.2 – *Evolution des fluctuations du champ de température autour de la valeur moyenne $\theta_m(t)$ (a-d), échelle de couleur $[-5 \times 10^{-3}; 2 \times 10^{-3}]$; fluctuations du champ de fraction volumique de solvant autour de la valeur moyenne $\varphi_{s,m}(t)$, échelle de couleur $[-2,2 \times 10^{-3}; 0]$ (e-h). Sur les deux champs sont superposées les lignes de courant définies dans l'intervalle $[-500; 500]$. La viscosité moyenne μ_m est déterminée pour la fraction de solvant $\varphi_{s,m}$: $\mu_m = \mu(\varphi_{s,m})$.*

pour 4 instants bien inférieurs au temps de diffusion massique $t \ll 1$. Sur les premiers temps, les champs de température (Fig. 5.2a) et de fraction de solvant (Fig. 5.2e) sont essentiellement diffusifs. Le refroidissement de la solution provoque un échange thermique convectif au niveau des frontières latérales, lequel génère localement un écoulement convectif qui se propage des parois vers le centre du film fluide : la figure 5.2b montre, à la fois une advection importante des lignes isothermes proches des parois latérales, et un champ encore essentiellement diffusif dans le cœur du film. L'écoulement ainsi formé vient également advecter le polymère qui s'est accumulé à la surface libre du fait de l'évaporation du solvant : de fines langues légèrement plus concentrées en polymères émergent de la surface libre (Fig. 5.2f). Pour un temps voisin de $t = 1,5 \times 10^{-2}$, la convection devient dominante par rapport à la diffusion thermique au centre du film (Fig. 5.2c) ; les langues plus concentrées en polymères sont transportées par le champ de vitesse pour former des panaches inversés (Fig. 5.2g). Pour les temps plus longs, l'intensité de la convection diminue fortement de sorte que la diffusion thermique redevient dominante au centre du film (Fig. 5.2d). Les langues de polymère ne sont alors plus advectées : l'excès local de polymère diffuse très lentement ce qui a pour effet d'épaissir les

langues en diminuant les gradients de fraction volumique (Fig. 5.2h). Durant l'intervalle de temps, $0 \leq t \leq 3 \times 10^{-2}$, la viscosité moyenne $\mu_m = \mu(\varphi_{s,m})$ n'a varié que de 4% de sa valeur initiale. La description de la naissance de la convection montre que l'écoulement est clairement d'origine thermique ; le champ de fraction de solvant est uniquement transporté de façon passive, sans diffuser.

Les temps plus longs, $t \geq 4 \times 10^{-2}$, sont présentés sur la figure 5.3. Comme le montre l'évolution



(a) $t = 4 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,523$ (e) $t = 4 \times 10^{-2}$, $\varphi_{s,m} = 0,899$, $\mu_m = 338,3\,mPa.s$

(b) $t = 1 \times 10^{-1}$, $\theta_m = -0,846$ (f) $t = 1 \times 10^{-1}$, $\varphi_{s,m} = 0,897$, $\mu_m = 370,7\,mPa.s$

(c) $t = 2,7 \times 10^{-1}$, $\theta_m = -0,994$ (g) $t = 2,7 \times 10^{-1}$, $\varphi_{s,m} = 0,891$, $\mu_m = 485,2\,mPa.s$

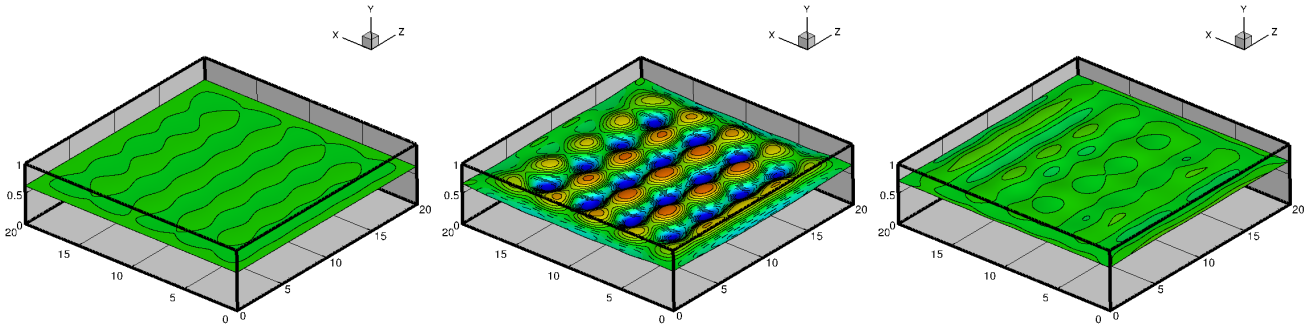
(d) $t = 1,5$, $\theta_m = -1,00$ (h) $t = 1,5$, $\varphi_{s,m} = 0,818$, $\mu_m = 8520\,mPa.s$

FIGURE 5.3 – *Evolution des fluctuations du champ de température autour de la valeur moyenne $\theta_m(t)$ (a-d), échelle de couleur $[-3 \times 10^{-3}; 2 \times 10^{-3}]$; fluctuations du champ de fraction volumique de solvant autour de la valeur moyenne $\varphi_{s,m}(t)$ (e-h), échelle de couleur $[-1,5 \times 10^{-2}; 5 \times 10^{-3}]$. Sur les deux champs sont superposées les lignes de courant définies dans l'intervalle $[-2; 2]$. La viscosité moyenne μ_m est déterminée pour la fraction de solvant $\varphi_{s,m}$: $\mu_m = \mu(\varphi_{s,m})$.*

de la température (Figs. 5.3a-5.3d), le champ thermique est maintenant totalement diffusif et tend vers une température stationnaire et uniforme qui est donnée par l'équilibre des flux (i) perdu par évaporation et (ii) gagné par l'échange thermique convectif à la surface libre. Alors que les vitesses semblent relaxer par diffusion visqueuse entre les instants $t = 4 \times 10^{-2}$ et $t = 1 \times 10^{-1}$ (Figs. 5.3e-5.3f), elles se réactivent autour de $t = 2.7 \times 10^{-1}$ en engendrant une convection importante du champ de fraction volumique de solvant (Fig. 5.3g). L'origine de cette nouvelle convection est due aux inhomogénéités de la fraction volumique de solvant qui ont été, non pas engendrées par une condition initiale aléatoire comme pour le modèle massique pur (Cf. Chap. 4), mais produites par la convection thermique présente aux temps courts. Il faut remarquer que les cellules massiques semblent plus étroites, et donc plus nombreuses, que celles produites par les instabilités thermoconvectives. Enfin pour les temps très long, l'intensité de l'écoulement diminue et le champ massique redevient diffusif dans le film liquide pour un temps proche de celui de diffusion massique e_{init}^2/D, $t \approx 1$ (Fig. 5.3h).

Pour la simulation tridimensionnelle réalisée avec une épaisseur initiale $e_{init} = 84\,\mu m$, nous allons examiner les champs de température sur la durée du régime thermique, puis nous nous intéresserons aux champs massiques sur les temps ultérieurs.

La figure 5.4 présente l'évolution de l'iso-surface de température moyenne $\theta_m(t)$ sur laquelle les iso-lignes de vitesse verticale sont tracées. Comme pour le cas bidimensionnel, la convection thermique est clairement transitoire. Elle se manifeste pour des temps voisins de $t = 0,025$ (Fig. 5.4b) :

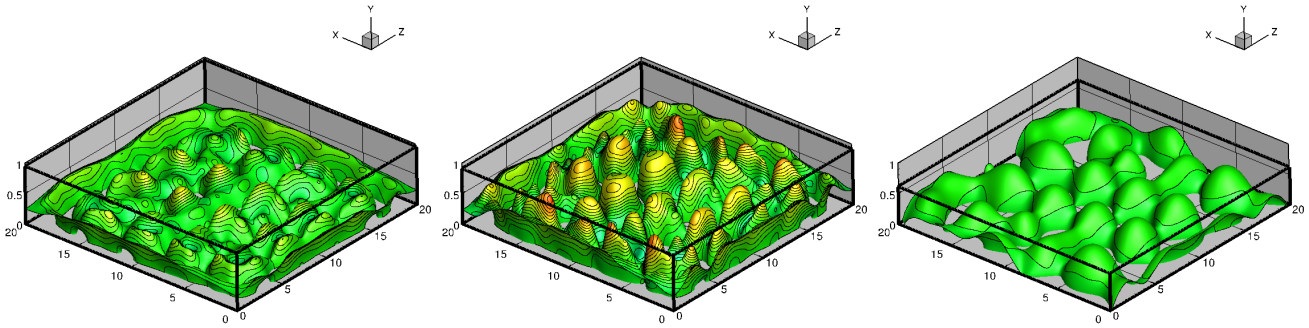


(a) $t = 0,0092$, $\theta_m = -0,132$, $\varphi_{s,m} = 0,900$, $\mu_m = 323\,mPa.s$ (b) $t = 0,025$, $\theta_m = -0,223$, $\varphi_{s,m} = 0,900$, $\mu_m = 323\,mPa.s$ (c) $t = 0,049$, $\theta_m = -0,325$, $\varphi_{s,m} = 0,899$, $\mu_m = 338\,mPa.s$

FIGURE 5.4 – *Iso-surface de la température moyenne $\theta(x,y,z,t) = \theta_m(t)$ et iso-lignes de la composante verticale de la vitesse $v_y \in [-400;400]$. La viscosité moyenne μ_m est déterminée pour la fraction de solvant $\varphi_{s,m}$: $\mu_m = \mu(\varphi_{s,m})$. Paramètres : $e_{init} = 84\,\mu m$, $(Pe_{int} = 0,25)$, $\varphi_p = 0,1$, $A = 20$, $h_{lat} = 0,001\,W/(m^2.K)$*

la composante verticale est très fortement corrélée avec le champ thermique (nombre de Prandtl $Pr = 3830$) avec des remontées de fluides chauds et des descentes de fluides froids. Contrairement à la simulation purement thermique où des rouleaux de convection émergeaient au voisinage des parois latérales (Fig. 3.26, page 64), ici nous conservons des structures de forme cellulaire. La raison d'une telle différence réside dans l'intensité du coefficient thermique convectif adoptée dans chacune des deux simulations, $h_{lat} = 10\,W/(m^2.K)$ pour le modèle thermique pur et $h_{lat} = 0,001\,W/(m^2.K)$ pour le modèle couplé. Dans le premier cas, la convection engendrée au niveau des frontières est directement contrôlée par les transferts thermiques à travers les parois, ce qui provoque des rouleaux de convection loin du cœur du film liquide. Dans le cas couplé, l'échange thermique convectif latéral est très faible : ce sont les instabilités de l'écoulement qui sont plus intenses que la convection produite en frontière. Il faut tout de même noter que lorsque les instabilités d'origine thermique sont négligeables (Figs. 5.4a et 5.4c), nous retrouvons bien des écoulements qui s'organisent parallèlement aux parois $X = 0$ et $X = A$, uniquement.

La figure 5.5 donne l'évolution de l'iso-surface de fraction volumique moyenne de solvant $\varphi_{s,m}(t)$



(a) $t = 0,17$, $\theta_m = -0,931$, $\varphi_{s,m} = 0,895$, $\mu_m = 406\,mPa.s$ (b) $t = 0,33$, $\theta_m = -0,995$, $\varphi_{s,m} = 0,891$, $\mu_m = 485\,mPa.s$ (c) $t = 1,5$, $\theta_m = -1,00$, $\varphi_{s,m} = 0,839$, $\mu_m = 3987\,mPa.s$

FIGURE 5.5 – *Iso-surface de la fraction volumique de solvant moyenne $\varphi_s(x,y,z,t) = \varphi_{s,m}(t)$ et isolignes de la composante verticale de vitesse $v_y \in [-6,5;6,5]$. La viscosité moyenne μ_m est déterminée pour la fraction de solvant $\varphi_{s,m}$: $\mu_m = \mu(\varphi_{s,m})$. Paramètres : $e_{init} = 84\,\mu m$, $(Pe_{int} = 0,25)$, $\varphi_p = 0,1$, $A = 20$, $h_{lat} = 0,001\,W/(m^2.K)$)*

avec les iso-lignes de vitesse verticale. Le mouvement du fluide se réactive pour $t \approx 0,33$ avec une advection importante du champ massique (Fig. 5.5b). La température adimensionnelle moyenne est

quasiment homogène et ne s'écarte que de $0,5\%$ de sa valeur à l'équilibre ($\theta_{equi} = -1$). Lorsque le temps est de l'ordre du temps de diffusion massique e_{init}^2/D ($t \approx 1$), l'écoulement fluide est fortement atténué (Fig. 5.5c). A cet instant, l'advection qui a eu lieu précédemment par l'écoulement est encore très visible car le temps de diffusion massique est très important par rapport aux effets visqueux ($Sc = \mu/(\rho\, D) = 4,6 \times 10^7$).

5.2 Influence des paramètres numériques

Le choix du pas de temps et du maillage dans la direction verticale étant très faiblement dépendant du caractère bi ou tridimensionnel de la modélisation du film liquide, nous avons réalisé tous nos calculs avec une approche purement 2D du problème. Les paramètres de simulation sont les suivants : $e_{init} = 100\,\mu m$, $\varphi_p = 10^{-4}$, $h_{lat} = 0,001\,W/(m^2.K)$ et $A = 20$.

5.2.1 Choix du pas de temps

Dans cette section, nous nous sommes appuyés sur les travaux réalisés pour le modèle massique (voir Tab. 4.1, page 77) : nous avons donc opté pour $n_y = 50$ mailles verticales avec un coefficient de raffinement géométrique de $0,95$ entre les mailles adjacentes pour mieux représenter les transferts à la surface libre. Le nombre de mailles dans les autres directions est simplement proportionnel à l'allongement : $n_x = A \times n_y$.

Compte tenu du rapport entre les temps de diffusion thermique et massique, $D/\alpha = 10^{-3}$, le pas de temps du modèle massique doit être substantiellement réduit pour bien représenter le régime thermique. Pour une épaisseur de $1\,mm$ le pas de temps dimensionel était de $10^{-3}\, e_{init}^2/\alpha$ (Tab. 3.2, page 45). Sachant que dans les problèmes couplés, les épaisseurs sont de l'ordre du dixième de millimètre, il est raisonnable de choisir un pas de temps environ 10 fois plus grand. Pour rester précis, nous choisirons un pas de temps physique de $5 \times 10^{-3}\, e_{init}^2/\alpha$. En utilisant l'échelle massique, le pas de temps adimensionnel devient $5 \times 10^{-3}\, D/\alpha$, soit $\Delta t = 5 \times 10^{-6}$. Ce pas de temps est beaucoup plus petit que celui utilisé dans le modèle massique pur lorsque $\varphi_p \leq 0,01$ (Tab. 4.1, page 77) ; il est du même ordre de grandeur pour les grandes fractions volumiques de polymère ($\varphi_p = 0,1$). Le temps adimensionnel d'intégration étant de l'ordre de l'unité (voir les illustrations de la section 5.1), le nombre d'itérations temporelles devient important et le coût de calcul prohibitif, surtout pour des simulations tridimensionnelles avec des allongements importants : pour une simulation couplée 3D avec un allongement $A = 20$ et 5×10^7 mailles sur 1024 processeurs sur la machine ADA de l'IDRIS (IBM SP), le temps CPU rapporté à une itération temporelle et par maille est $2,20 \times 10^{-4}\, s/iter/maille$ ($2,14 \times 10^{-7} s/iter/maille/proc$), soit un temps humain de $\approx 10\, s$ pour une itération temporelle. Afin de réduire le nombre d'itérations, nous avons opté sur l'utilisation d'un pas de temps adaptatif.

Le pas de temps est choisi égal à $\Delta t = 5 \times 10^{-6}$ tant que la solution est dans le régime de diffusion, $Pe_{sol,c} < 1$ (voir relation (4.2), page 75). Ensuite, il est relaxé en l'augmentant de $0,1\%$ à chaque itération si les conditions suivantes sont respectées : (i) le pas de temps ne peut excéder une valeur limite Δt_{max} et (ii) le nombre de Courant doit respecter la condition CFL. En définissant le temps $t_{d->cv}$ qui correspondant à l'instant de la transition entre une solution diffusive à un écoulement convectif par :

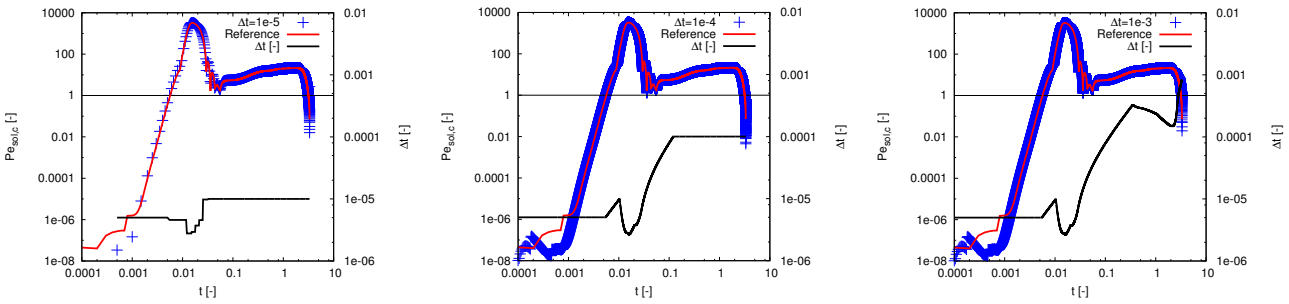
$$\forall t < t_{d->cv},\ Pe_{sol,c}(t) < 1 \ \text{ et } Pe_{sol,c}(t_{d->cv}) = 1,$$

le pas de temps à l'itération $(n+1)$ s'écrit donc

$$\begin{cases} \forall t \leq t_{d->cv}, & \Delta t^{n+1} = 5 \times 10^{-6} \\ \forall t \geq t_{d->cv}, & \Delta t^{n+1} = \min\left(1,001 \times \Delta t^{n}; \Delta t_{max}; \dfrac{0,5}{\max_{i,j,k}\left(\frac{U_{i,j,k}^{(n)}}{\Delta x_i} + \frac{V_{i,j,k}^{(n)}}{\Delta y_j} + \frac{W_{i,j,k}^{(n)}}{\Delta z_k}\right)}\right) \end{cases} \tag{5.1}$$

avec $U_{i,j,k}^{(n)}$, $V_{i,j,k}^{(n)}$ et $W_{i,j,k}^{(n)}$ les composantes de la vitesse à l'itération n, interpolées sur la maille de pression de taille $\Delta x_i \times \Delta y_j \times \Delta z_k$. Dans l'expression (5.1), le pas de temps est conservé constant à 5×10^{-6} tant que $Pe_{sol,c} < 1$. Ce choix permet de bien représenter la croissance de la perturbation et sa propagation dans le film liquide.

La figure 5.6 présente la comparaison entre une simulation de référence effectuée pour un pas de



(a) $\Delta t_{max} = 10^{-5}$ (b) $\Delta t_{max} = 10^{-4}$ (c) $\Delta t_{max} = 10^{-3}$

FIGURE 5.6 – *Comparaison de l'évolution du nombre de Péclet massique $Pe_{sol,c}(t)$ pour des simulations à pas de temps constant (référence), $\Delta t = 10^{-6}$, et variable selon la relation (5.1) (axe gauche) et pas de temps instantané Δt (axe droit). Paramètres : $e_{init} = 100\,\mu m$, $h_{lat} = 0,001\,W/(m^2.K)$, $\varphi_p = 10^{-4}$ et $A = 20$.*

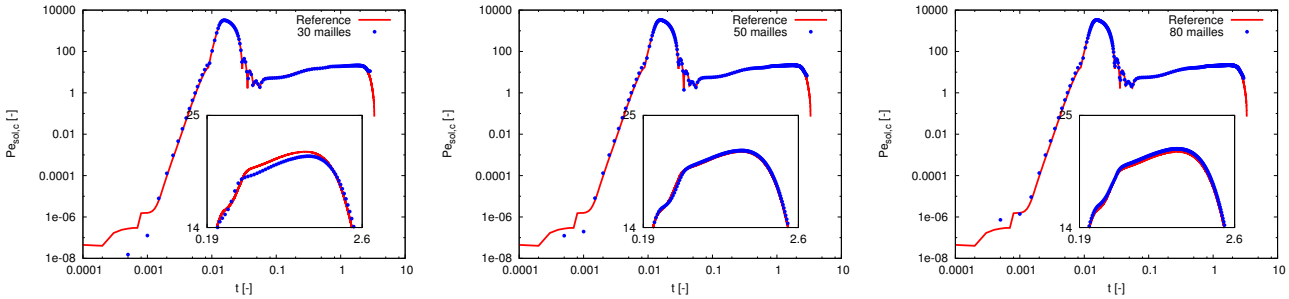
temps constant, $\Delta t = 10^{-6}$, et trois simulations menées pour trois valeurs de Δt_{max} (Eq. 5.1). Hormis sur les temps les plus courts, pour lesquels le nombre de Péclet massique $Pe_{sol,c}(t)$ est inférieur à 10^{-6}, les courbes obtenues avec des pas de temps variables sont superposées à la courbe de référence. Sur l'axe droit de ces mêmes figures est représentée l'évolution du pas de temps. Nous vérifions bien qu'il reste constant à 5×10^{-6} tant que $Pe_{sol,c}(t) < 1$. Dès que l'écoulement devient convectif, le pas de temps est laissé libre d'évoluer. Il augmente d'abord d'une valeur de un pour mille par itération avant d'être contrôlé par le nombre de Courant limité à une valeur de $0,5$. Dès que le nombre de Péclet massique $Pe_{sol,c}(t)$ diminue, le pas de temps ré-augmente jusqu'à atteindre la valeur maximale autorisée Δt_{max}. Il faut noter que lorsque $\Delta t_{max} = 10^{-3}$ et $t \gtrsim 0,25$, la convection reprend de la vigueur ce qui entraîne que la contrainte liée à la condition de Courant-Friedrichs-Lewy redevient prépondérante dans la définition du pas de temps instantané. Pour les temps très long, $t \gtrsim 1,25$, la convection s'effondre et Δt augmente jusqu'à atteindre la valeur limite Δt_{max}.

L'étude précédente nous conduit donc à adopter un pas de temps variable selon la loi (5.1), avec une valeur de pas de temps limite de $\Delta t_{max} = 10^{-3}$.

5.2.2 Maillage

Le choix du pas de temps étant établi (voir le section précédente), nous procédons maintenant à l'étude du maillage. Les comparaisons s'effectuent toujours sur le nombre de Péclet massique calculé dans la zone centrale du film liquide, $Pe_{sol,c}$. La référence est la même que celle utilisée pour l'étude du pas de temps. Elle correspond à une simulation avec un pas de temps constant $\Delta t = 10^{-6}$ et 50

mailles verticales raffinées au voisinage de la surface libre avec une loi géométrique de raison $0,95$ construite sur les tailles des mailles adjacentes ; le nombre de mailles dans la direction horizontale est régulier et toujours défini par $A \times n_y$. Les maillages que nous étudions utilisent la même loi de distribution des mailles que la référence. La figure 5.7 présente les évolutions du nombre de Péclet



(a) *30 mailles verticales* (b) *50 mailles verticales* (c) *80 mailles verticales*

FIGURE 5.7 – *Comparaison de l'évolution du nombre de Péclet massique $Pe_{sol,c}(t)$ entre le maillage de référence ($n_y = 50$) et un pas de temps constant $\Delta t = 10^{-6}$, et trois maillages ($ny = 30$, 50 et 80) avec des pas de temps variables selon la loi* (5.1) *avec $\Delta t_{max} = 10^{-3}$. Paramètres : $e_{init} = 100\,\mu m$, $h_{lat} = 0,001\,W/(m^2.K)$, $\varphi_p = 10^{-4}$ et $A = 20$.*

massique $Pe_{sol,c}(t)$ pour les maillages $n_y = 30$, 50 et 80. A l'exception des premiers instants pour lesquels les simulations diffèrent substantiellement de la courbe de référence, les écarts relatifs sont tout au plus de 2%. Cette différence est atteinte pour $n_y = 80$ dans l'intervalle de temps $0,19 \leq t \leq 2,6$ (voir agrandissement dans la figure 5.7c).

Toujours dans la problématique de conserver des temps de calcul raisonnables, nous avons opté pour un maillage de seulement $n_y = 50$ mailles réparties selon une raison géométrique de $0,95$.

5.3 Identification des seuils de transition thermiques et massiques

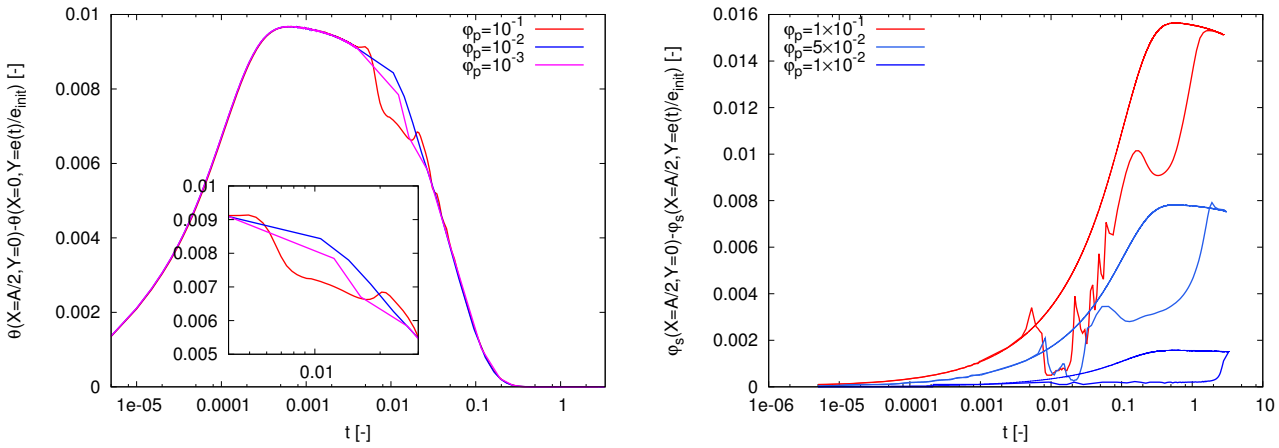
La déstabilisation des solutions transitoires diffusives est engendrée par des échanges thermiques convectifs aux parois latérales du récipient. La solution fluide est initialisée au repos, à la température de l'environnement et à une fraction volumique de solvant uniforme qui dépend des simulations. Les simulations de cette section sont bidimensionnelles, avec une épaisseur initiale $e_{init} = 100\,\mu m$, un allongement $A = 20$ et un coefficient d'échange thermique convectif $h_{lat} = 0,001\,W/(m^2.K)$.

Compte tenu des épaisseurs des films liquides inférieures à $1\,mm$, les écoulements sont pilotés principalement par les variations de la tension de surface en fonction de la température et de la concentration en solvant ; la contribution de la poussée d'Archimède est négligeable.

5.3.1 Étude de la déstabilisation de la solution diffusive

La figure 5.8 présente au centre du film liquide ($X = A/2$) les évolutions de la différence entre le fond et la surface libre de la température ($\theta(A/2,0) - \theta(A/2, e(t)/e_{init})$) et de la fraction volumique de solvant ($\varphi_s(A/2,0) - \varphi_s(A/2, e(t)/e_{init})$) pour différentes valeurs de la fraction initiale de polymère φ_p.

Sur la figure 5.8a, nous constatons que les courbes sont superposées (i) sur les temps courts pour lesquels les perturbations n'ont pas encore engendré l'advection du champ thermique, et (ii) sur les temps longs où la convection relaxe faute de différence suffisante de température dans le film liquide. Entre ces deux intervalles de temps, le régime convectif se développe et crée des écarts de température légèrement différents selon les valeurs de φ_p. L'apparition de la convection a déjà été discutée en détails dans la section 3.2, page 40, lors de l'étude des écoulements et des transferts pour le modèle thermique pur.



(a) *Température* (b) *Fraction volumique de solvant*

FIGURE 5.8 – *Évolutions des différences de température et de fraction volumique de solvant entre le fond du récipient et la surface libre, au milieu du film liquide, $X = A/2$. Sur la figure b sont ajoutées les évolutions dans le cas purement diffusif (courbes avec des traits fins). Paramètres : $e_{init} = 100\,\mu m$, $h_{lat} = 0,001\,W/(m^2.K)$ et $A = 20$.*

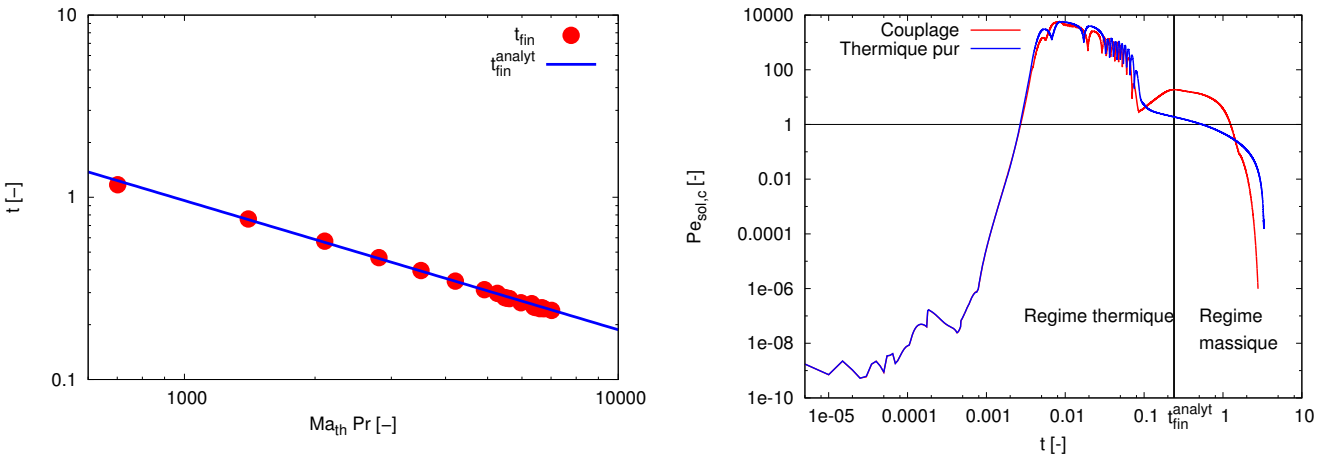
Les évolutions des écarts des fractions de solvant sont données sur la figure 5.8b. Pour chacune des simulations ont été représentées les évolutions en diffusion pure, c'est-à-dire en l'absence des contributions d'advection ($(\overrightarrow{V} \cdot \nabla)$.). Nous constatons que les courbes obtenues avec et sans ces termes s'écartent l'une de l'autre à l'apparition de la convection d'origine thermique, pour $0,004 \lesssim t \lesssim 0,025$ (voir Fig. 5.8a) : le champ massique est donc advecté par l'écoulement (voir des exemples de champs sur les figures 5.2e-5.2h). Bien que cette thermoconvection ait disparu pour $t \approx 0,1$, les résultats des simulations convectives ne re-convergent que pour des temps supérieurs à l'unité vers les solutions de diffusion instationnaires. Ce délai est à imputer à la fois au temps de diffusion massique important, mais surtout à l'apparition de la convection massique qui réactive l'écoulement fluide sur les temps longs (voir par exemple l'augmentation du nombre de Péclet solutal $Pe_{sol,c}$ sur la figure 5.7b, pour $t > 0,1$).

Contrairement au écarts de température qui sont insensibles à la fraction volumique de polymère dans le régime diffusif, ce n'est naturellement pas le cas pour les courbes en fraction de solvant. En effet, le gradient de φ_s est proportionnel à la fraction volumique de polymère (voir les conditions aux limites à la surface libre (2.40b), page 29) : plus φ_p augmente, plus la variation de fraction de solvant est importante entre le fond et la surface libre.

5.3.2 Délimitation des régimes convectifs thermique et massique

L'objectif de cette section est de délimiter le régime thermique du régime massique. Pour cela, nous avons opté sur une mesure de l'écart de température dans le film fluide en remarquant que, si celui-ci est quasiment nul, la convection ne peut plus être engendrée par les inhomogénéités thermiques, mais uniquement pas les contributions massiques. Nous avons donc relevé la différence de température entre le fond et la surface libre, au centre du film liquide (Fig. 5.8a). Si cette différence est inférieure à $0,01\%$ de la valeur maximale au cours du temps, nous considérerons que le régime thermique a pris fin (température quasi homogène). Avec ce choix, l'instant de fin du régime thermique, noté t_{fin}, ne dépend pas de la fraction volumique de solvant car les transferts thermiques sont redevenus purement diffusifs. En revanche, ce temps limite est fonction de l'épaisseur initiale de la solution.

La figure 5.9a présente la sensibilité du temps adimensionnel de fin du régime thermique t_{fin} en fonction du produit du nombre de Marangoni thermique et du nombre de Prandtl : $Ma_{th}Pr = -(\partial\gamma)/(\partial T) \times e_{init}\Delta T/(\rho\alpha^2)$. A partir des temps relevés sur les simulations numériques, nous obte-



(a) *Temps de fin du régime thermique en fonction de $Ma_{th}Pr$. La loi de régression $t_{fin}^{analyt}(Ma_{th}Pr)$ est donnée par l'équation* (5.2).

(b) *Comparaison des évolutions du nombre de Péclet massique pour les modèles couplé et purement thermique. Paramètres : $e_{init} = 100\,\mu m$, $\varphi_p = 0,1$, $h_{lat} = 0,001\,W/(m^2.K)$, $A = 20$ ce qui donne $Ma_{th}Pr = 7020$.*

FIGURE 5.9 – *Délimitation des régimes thermique et massique.*

nons la loi analytique

$$t_{fin}^{analyt} = 128,6 \times (Ma_{th}Pr)^{-0,71} \tag{5.2}$$

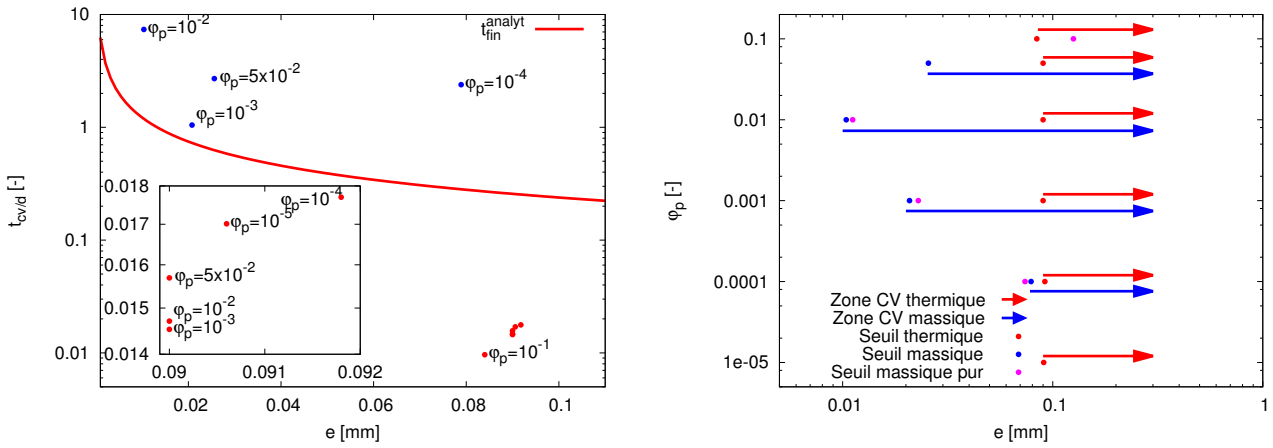
La figure 5.9b présente les évolutions du nombre de Péclet massique au cœur du film liquide $Pe_{sol,c}$, pour les modèles couplé et thermique, lorsque la fraction initiale de polymère est $\varphi_p = 0,1$. Dans le modèle thermique, l'épaisseur du film liquide varie avec le temps et la fraction volumique de solvant reste gelée à sa valeur initiale. D'après la figure, nous constatons que les deux courbes restent relativement proches l'une de l'autre tant que $t \lesssim 0,075$. Passée cette valeur, le nombre de Péclet massique croît dans le modèle couplé alors que celui du modèle thermique s'amortit lentement au cours du temps. Il faut noter que dans ce dernier modèle, la viscosité de la solution reste identique à celle initiale alors qu'elle augmente dans le modèle couplé (effet à priori stabilisant). Il est intéressant de noter que l'instant $t \approx 0,075$, où les évolutions des nombres de Péclet diffèrent entre les modèles, est du même ordre de grandeur que celui correspondant à la fin du régime thermique $t_{fin}^{analyt} \approx 0,24$ (Eq. (5.2)).

5.3.3 Seuils de transition du modèle couplé : régimes thermique et massique

Comme pour les modèles thermique pur (Chap. 3) et massique pur (Chap. 4), l'encadrement des seuils de transition s'effectue à l'aide des courbes d'évolution du nombre de Péclet. Dans le cas du modèle couplé, c'est le nombre de Péclet massique $Pe_{sol,c}$ au centre de la zone fluide qui est considéré compte tenu du rapport des temps de diffusion massique et thermique qui est de l'ordre de 1000. Les seuils seront dits d'origine thermique si le temps $t_{cv/d}$ correspondant à $Pe_{sol,c}(t_{cv/d}) = 1$ est inférieur à la fin du régime thermique t_{fin}^{analyt} (Eq. (5.2)) ; dans le cas contraire, les seuils définiront le régime massique.

La figure 5.10 donne, pour chaque fraction volumique de polymère et les régimes thermique et massique, les caractéristiques critiques qui correspondent à l'épaisseur initiale e_{init} et à l'instant $t_{cv/d}$ pour lesquels le nombre de Péclet massique atteint un maximum local à $Pe_{sol,c}(t_{cv/d}) = 1$.

Comme attendu, les temps de déclenchement de la convection thermique sont inférieurs à ceux relevés pour le régime massique, de plus de deux décades (Fig. 5.10a). Alors que les temps thermiques



(a) *Temps critiques*

(b) *Épaisseurs critiques du modèle couplé et du modèle massique pur.*

FIGURE 5.10 – *Épaisseurs et temps critiques correspondant à la transition entre une solution diffusive et un écoulement convectif pour les modèles thermique et massique. Paramètres* $h_{lat} = 0,001\,W/(m^2.K)$ *et* $A = 20$.

sont très voisins, compris entre $t_{cv/d} \approx 0,01$ et $t_{cv/d} \approx 0,02$, ceux du régime massique s'étalent sur presque un ordre de grandeur entre $t_{cv/d} \approx 1$ et $t_{cv/d} \approx 8$. Nous pouvons noter que la convection massique prend bien place à la fin du régime thermique donné par la courbe $t_{lim}^{analyt} = f(e_{init})$ (Eq. (5.2)).

En examinant la figure 5.10b, nous constatons que les épaisseurs critiques dans le régime thermique sont relativement constantes, comprises entre $e_{init} = 0,08\,mm$ et $0,1\,mm$ (points rouges), alors que celles du régime massique varient sur une décade (points bleus). De plus dans le régime thermique, les épaisseurs seuils sont toujours supérieures à celles du régime massique, du moins pour $\varphi_p \in \{0,05; 0,01; 0,001; 0,0001\}$. Cette distinction entre ces deux épaisseurs n'est possible uniquement parce que les temps d'apparition de la convection dans le régime massique sont bien supérieurs à ceux du régime thermique (Fig. 5.10a). En revanche, il n'est plus possible de distinguer les épaisseurs critiques dans le régime massique pour $\varphi_p = 0,1$ et $\varphi_p = 10^{-5}$. En effet, la convection thermique, qui est apparue aux temps courts, vient se coupler avec celle d'origine massique avant la fin du régime thermique : une illustration de ce couplage est visible sur la figure 5.9b où, lorsque la convection thermique perd en intensité, elle est remplacée par celle d'origine massique. Enfin, malgré la nature très différente des perturbations utilisées entre le modèle purement massique (perturbation massique initiale aléatoire, points roses) et le modèle couplé (perturbation initié par l'écoulement du régime thermique, points bleus), les seuils ne diffèrent que très faiblement. Les flèches sur la figure 5.10b illustrent la direction de la zone convective pour les deux types de régimes. Plus l'épaisseur initiale augmente, plus on a de chance d'avoir de la convection entretenue par les deux types de transferts (thermique et massique).

Les tableaux 5.1 et 5.2 récapitulent les paramètres critiques pour les régimes thermique et solutal,

h_{lat} \ φ_p $W/(m^2K)$	10^{-1}		5×10^{-2}		10^{-2}		10^{-3}		10^{-4}		10^{-5}	
	e_{init} μm	$t_{cv/d}$	e_{init} μm	$t_{cv/d}$	e_{init} μm	$t_{cv/d}$	e_{init} μm	$t_{cv/d}$	e_{init} μm	$t_{cv/d}$	e_{init} μm	$t_{cv/d}$
0,01	82	0,008	81	0,157	83	0,121	84	0,102	89	0,014	88	0,014
0,001	84	0,010	90	0,016	90	0,015	90	0,015	92	0,018	91	0,017
0,0001	85	0,011	90	0,016	90	0,015	90	0,015	94	0,020	92	0,020

TABLE 5.1 – *Synthèse des épaisseurs initiales et temps critiques pour la transition entre un régime diffusif thermique et un écoulement thermo-convectif pour un allongement* $A = 20$.

h_{lat} \ φ_p	10^{-1}		5×10^{-2}		10^{-2}		10^{-3}		10^{-4}		10^{-5}	
$W/(m^2K)$	e_{init} μm	$t_{cv/d}$	e_{init} μm	$t_{cv/d}$	e_{init} μm	$t_{cv/d}$	e_{init} μm	$t_{cv/d}$	e_{init} μm	$t_{cv/d}$	e_{init} μm	$t_{cv/d}$
0,01	-	-	25	2,520	10	7,32	21	1,243	71	0,447	-	-
0,001	-	-	26	2,700	10	7,37	21	1,047	79	2,39	-	-
0,0001	-	-	26	2,740	10	1,25	21	1,21	80	2,52	-	-

TABLE 5.2 – *Synthèse des épaisseurs initiales et temps critiques pour la transition entre un régime diffusif massique et un écoulement soluto-convectif pour un allongement $A = 20$.*

et trois valeurs du coefficient d'échange thermique convectif imposé aux parois latérales h_{lat}. Dans le régime thermique, l'augmentation du coefficient d'échange a tendance à favoriser la déstabilisation avec des épaisseurs légèrement plus faibles, surtout entre $h_{lat} = 0,01\,W/(m^2.K)$ et $0,001\,W/(m^2.K)$. Ce comportement est similaire aux résultats obtenus lors de l'analyse du modèle thermique pur où une augmentation de la viscosité a été observée (voir Sec. 3.5.5, page 55) : l'accroissement de la valeur de h_{lat} augmente les gradients thermiques au voisinage des parois et donc l'intensité de la perturbation qui va se propager des frontières vers le cœur de l'écoulement. L'effet du coefficient d'échange sur l'épaisseur critique dans le régime massique semble être similaire au régime thermique. Cela s'explique probablement par le fait que les perturbations de la convection massique sont engendrées par l'advection du champ massique : si la convection thermique est favorisée par l'augmentation de h_{lat}, il en va alors de même pour l'épaisseur critique en régime massique.

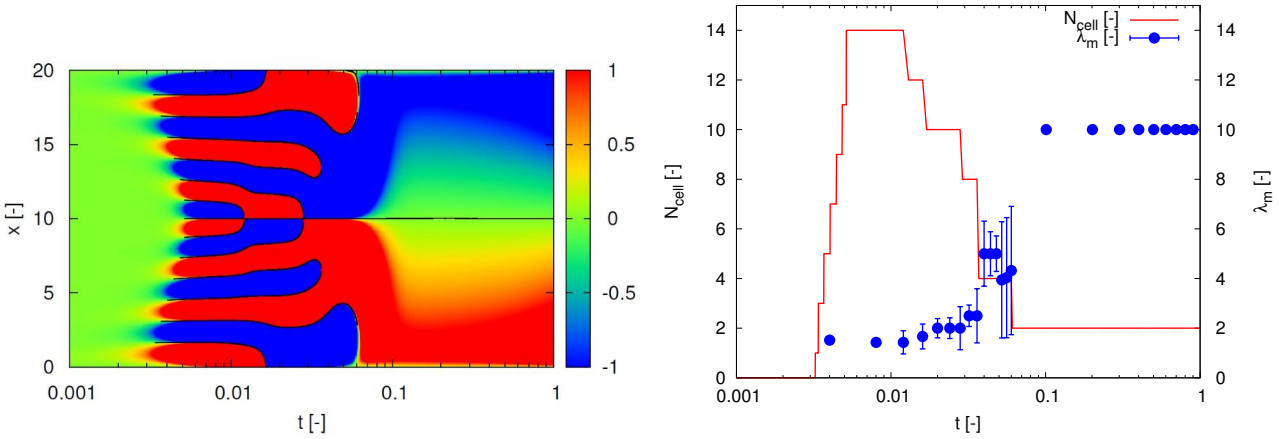
5.4 Analyse en espace et en temps des écoulements 2D

Pour étudier l'évolution des écoulements bidimensionnels, nous allons construire des diagrammes espace-temps en relevant la composante horizontale de la vitesse à la surface libre, en fonction du temps. Trois types de simulations sont présentées pour illustrer les régimes d'écoulements : les régimes purement thermique ou massique, et le régime pour lequel les instabilités massiques émergent à la suite de la convection thermique. L'allongement du film liquide et le coefficient thermique convectif aux parois latérales sont $A = 20$ et $h_{lat} = 0,001\,W/(m^2.K)$.

5.4.1 Régime thermique

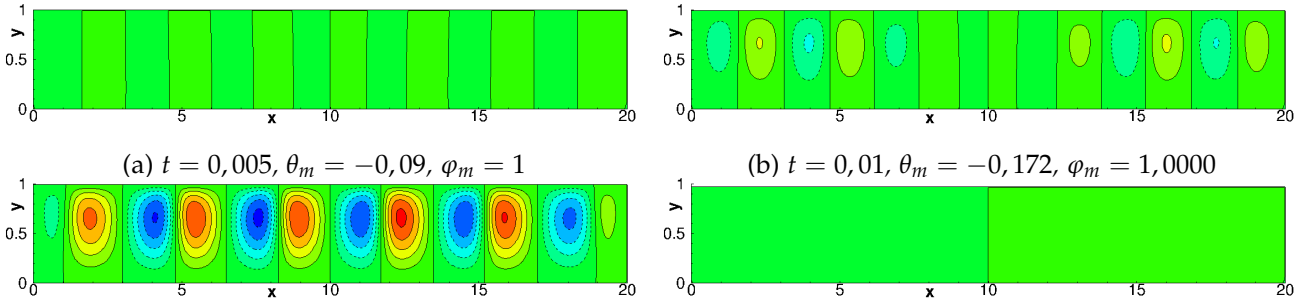
La figure 5.11a présente le diagramme espace-temps pour une épaisseur initiale de fluide $e_{init} = 100\,\mu m$ et une fraction volumique de polymère $\varphi_p = 10^{-5}$. Comme dans le modèle purement thermique (voir Sec. 3.5.1, page 47), nous constatons que les cellules apparaissent d'abord au voisinage des parois latérales, puis se propagent vers le cœur du film liquide (voir également les fonctions de courant sur les figures 5.12a-5.12c) : ce mode de déstabilisation est lié au germe d'instabilité qui est engendré proche des frontières par l'échange convectif. Le temps de vie de ces cellules dans le fluide est de l'ordre du temps de diffusion thermique $e_{init}^2/\alpha = 0,1$, ce qui indique qu'elles sont bien créées dans le régime thermique. Sur les temps longs, $t > 0,1$, des vitesses importantes persistent dans la solution, au voisinage des frontières. Le couple constitué de deux grandes cellules contra-rotatives occupe la totalité de la solution fluide (Fig. 5.12d). Il est engendré par l'écoulement induit par le transfert thermique convectif aux parois latérales. Contrairement à ce qui a été dit précédemment, cet écoulement n'est plus en mesure de déstabiliser le cœur du film fluide en formant des petites cellules de convection.

La lente croissance du nombre de cellules au cours du temps (Fig. 5.11b) est la traduction de la propagation des instabilités des parois vers le centre du film liquide. Après avoir atteint une valeur maximale de 14 (fig. 5.11b-5.12b), ces cellules de convection disparaissent lentement et finissent



(a) *Diagramme espace-temps,* $V_x(X,t)$. (b) *Nombre* N_{cell} *et taille* λ_m *des cellules convectives.*

FIGURE 5.11 – *Développement des cellules convectives au niveau de la surface libre. Paramètres :* $e_{init} = 100\,\mu m$, $\varphi_p = 10^{-5}$, $A = 20$ *et* $h_{lat} = 0,001\,W/(m^2.K)$.



(a) $t = 0,005$, $\theta_m = -0,09$, $\varphi_m = 1$ (b) $t = 0,01$, $\theta_m = -0,172$, $\varphi_m = 1,0000$

(c) $t = 0,015$, $\theta_m = -0,246$, $\varphi_m = 1,0000$ (d) $t = 0,1$, $\theta_m = -0,852$, $\varphi_m = 1,0000$

FIGURE 5.12 – *Lignes de courant dans l'intervalle* $[-500;500]$, *pour une épaisseur de* $100\,\mu m$, *une fraction volumique de polymère de* 10^{-5}.

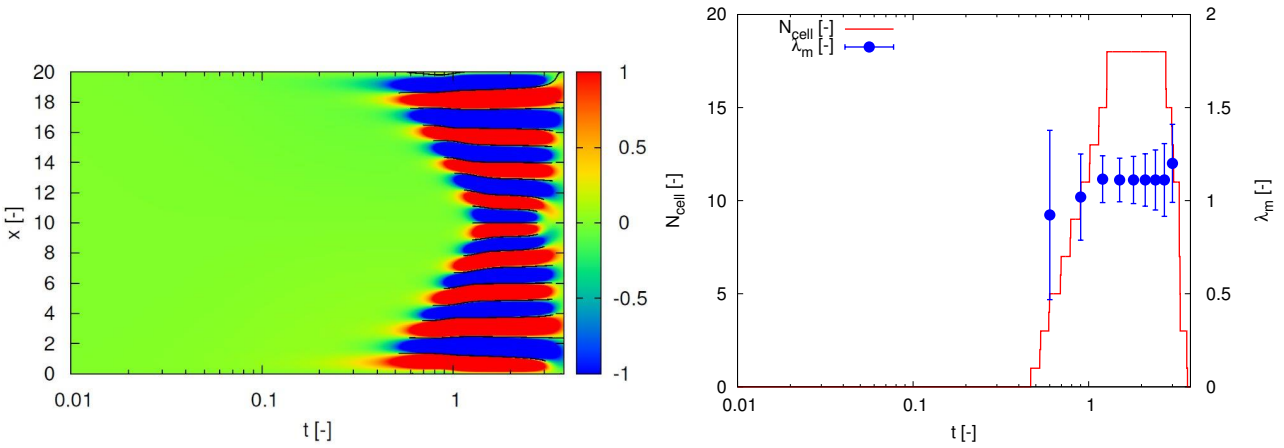
par s'éteindre totalement pour $t \approx 0,07$. Passé cet instant, seule la convection latérale persiste sur les temps longs. Lorsque l'ensemble du film fluide est déstabilisé, la taille moyenne des cellules dans l'épaisseur de la solution est $\lambda_m \approx 1,4$. Avec la lente disparition des cellules convectives, la valeur de λ_m augmente lentement pour atteindre 2. A la fin du régime d'instabilité thermique, la taille des cellules croit brutalement à une valeur moyenne de 5 fois l'épaisseur fluide (paramètre adimensionnel).

5.4.2 Régime massique

Pour une épaisseur plus faible, $e_{init} = 30\,\mu m$, et une fraction de polymère plus importante, $\varphi_p = 0,05$, seul le régime massique est instable (Fig. 5.10b).

La figure 5.13a montre que le développement des cellules de convection s'effectue plus tardivement et sur des intervalles de temps plus longs que dans le régime thermique. Comme les germes de déstabilisation sont toujours engendrés par les transferts thermiques au niveau des parois latérales, nous constatons que, similairement au régime thermique, les cellules naissent d'abord au voisinage des frontières avant d'envahir la totalité du film liquide (Figs. 5.14a-5.14d).

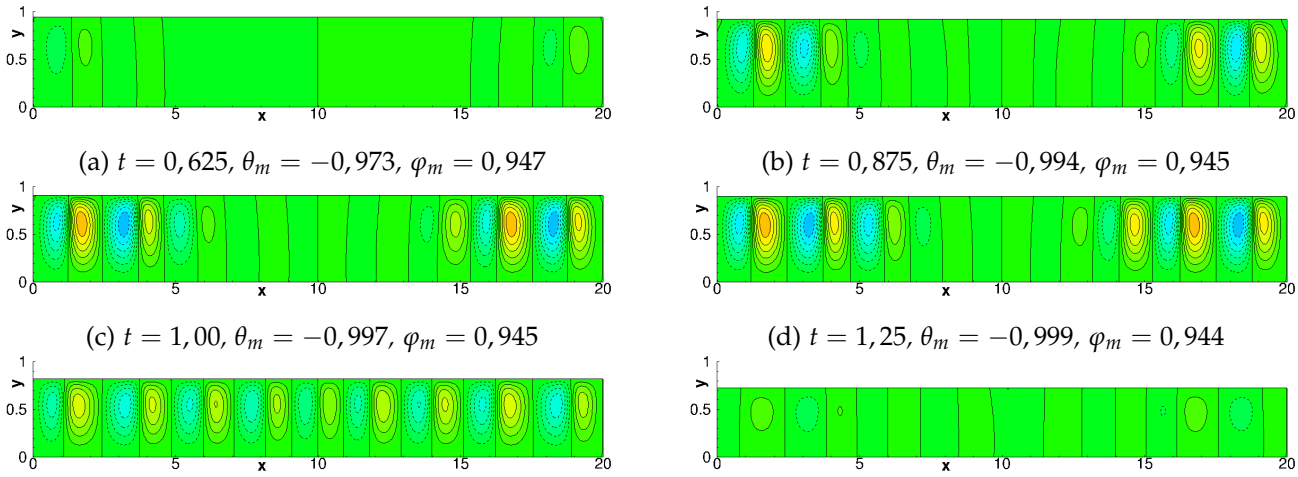
Une évolution lente et régulière du nombre de cellules convectives N_{cell}, de $t \approx 0,5$ à $t \approx 1$, est observée (Fig. 5.13b). Au maximum, 18 cellules occupent la totalité du film liquide avec une longueur d'onde moyenne proche de l'unité (Fig. 5.14d). A partir de $t \approx 1,2$, les cellules convectives sont pilotées par la diffusion avec une lente augmentation de leur taille moyenne qui atteint à la fin de la



(a) *Diagramme espace-temps, $V_x(X,t)$.* (b) *Nombre N_{cell} et taille λ_m des cellules convectives.*

FIGURE 5.13 – *Développement des cellules convectives au niveau de la surface libre. Paramètres : $e_{init} = 30\,\mu m$, $\varphi_p = 0,05$, $A = 20$ et $h_{lat} = 0,001\,W/(m^2.K)$.*

simulation $\lambda_m \approx 1,2$. Il faut noter que la taille moyenne des cellules convectives est plus faible dans le régime convectif massique que thermique.



(a) $t = 0,625$, $\theta_m = -0,973$, $\varphi_m = 0,947$ (b) $t = 0,875$, $\theta_m = -0,994$, $\varphi_m = 0,945$

(c) $t = 1,00$, $\theta_m = -0,997$, $\varphi_m = 0,945$ (d) $t = 1,25$, $\theta_m = -0,999$, $\varphi_m = 0,944$

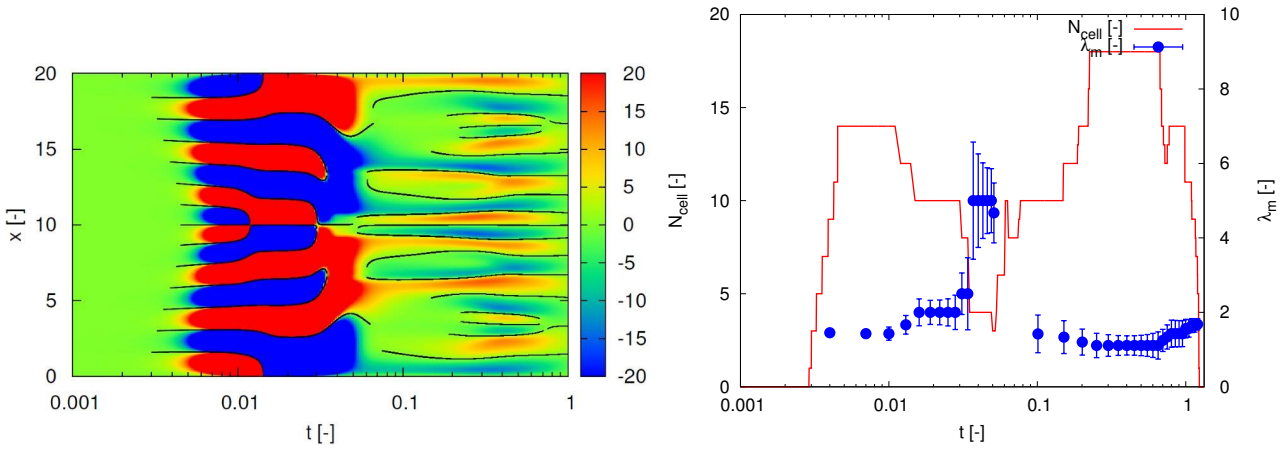
(e) $t = 2,00$, $\theta_m = -1,000$, $\varphi_m = 0,939$ (f) $t = 3,05$, $\theta_m = -1,000$, $\varphi_m = 0,931$

FIGURE 5.14 – *Coupes verticales représentant les lignes de courant pour une épaisseur de $30\,\mu m$ ($Pe_{int} = 9 \times 10^{-2}$), une fraction volumique de polymère de $0,05$. Les lignes de courant sont comprises dans l'intervalle $[-2;2]$.*

5.4.3 Régime couplé thermique et massique

Nous choisissons maintenant les paramètres de la simulation de sorte que le régime convectif massique se déclenche à la suite du régime convectif thermique : $\varphi_p = 0,1$ et $e_{init} = 100\,\mu m$. Les champs ont déjà été présentés en détail dans la section 5.1, page 87.

Nous allons maintenant examiner les diagrammes espace-temps et les évolutions du nombre de cellules et de leur taille dans le régime thermique et massique (Fig. 5.15). Nous constatons d'abord que l'intensité de la convection d'origine thermique ($t \lesssim 0,06$) est bien plus importante que la convection massique ($t \gtrsim 0,06$). Cette identification temporelle des régimes est nette lorsque nous examinons les évolutions des nombres de Péclet solutal $Pe_{sol,c}$ du modèle couplé et thermique pur (voir Fig. 5.9b et la section 5.3.2). La taille moyenne des cellules de convection λ_m est aussi moindre pour la convection massique que pour la convection thermique. La conséquence est que le nombre de cellules N_{cell} est plus important dans le régime massique que dans le régime thermique.



(a) *Diagramme espace-temps, $V_x(X,t)$.* (b) *Nombre N_{cell} et taille λ_m des cellules convectives.*

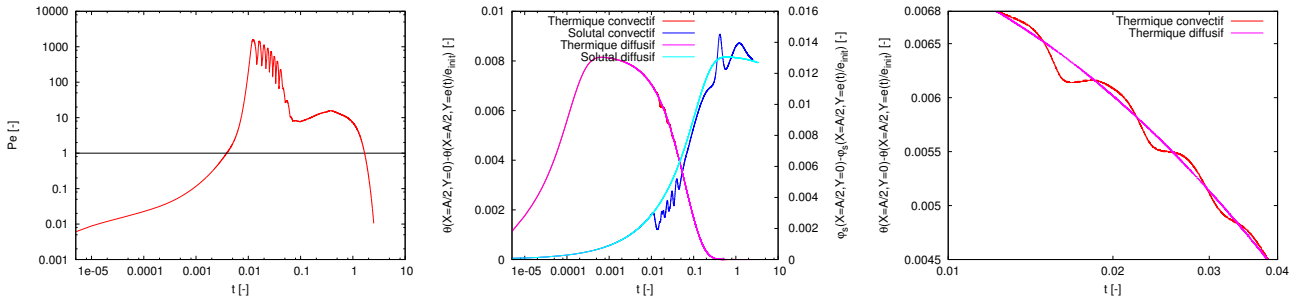
FIGURE 5.15 – *Développement des cellules convectives au niveau de la surface libre. Paramètres : $e_{init} = 100\,\mu m$, $\varphi_p = 10^{-1}$, $A = 20$ et $h_{lat} = 0,001\,W/(m^2.K)$.*

Comme indiqué dans le tableau 5.2, nous n'avons pas réussi à identifier l'apparition de la convection massique à partir d'un régime diffusif. En utilisant dans la figure 5.10b la proximité des épaisseurs critiques entre le régime thermique du modèle couplé (points rouges ; pour une fraction volumique de polymère $\varphi_p = 0,1$, le seuil massique est confondu au seuil thermique) et celles identifiées dans le modèle massique pur (points roses), nous obtiendrions une épaisseur initiale pour la transition diffusif/convectif d'environ $126\,\mu m$ (Tab. 4.5, page 78), valeur légèrement supérieure à celle choisie dans la présente simulation : le régime massique devrait donc rester diffusif. Ce raisonnement qualitatif semble donc indiquer que la convection massique n'est pas née de petites perturbations du champ diffusif mais de la convection d'origine thermique. Cela est confirmé lorsque nous examinons l'apparition des cellules convectives massiques. Elles ne sont pas issues du voisinage des parois latérales pour se propager dans le cœur du film liquide (Fig. 5.13a), mais elles résultent des structures thermo-convectives qui sont apparues plus tôt dans la solution. La figure 5.15a en effet indique que certaines cellules convectives massiques sont des émanations des cellules thermo-convectives en fin de vie.

5.5 Cellules convectives 3D à la surface libre : régime couplé thermique et massique

Dans cette section, nous examinons plus en détails la nature et l'évolution d'un écoulement tridimensionnel dans lequel une instabilité thermique apparaît d'abord sur les temps courts avant d'être suivie par une instabilité massique sur les temps plus longs. Les paramètres sont voisins de ceux utilisés pour la simulation bidimensionnelle de la section 5.4.3, mais pour une épaisseur légèrement plus faible : $e_{init} = 84\,\mu m$, $\varphi_p = 0,1$, $h = 0,001\,W/(m^2.K)$ et $A = 20$. L'épaisseur est choisie de sorte que nous soyons proche de la valeur critique 3D du régime thermique. Sachant que les écoulements thermiques purs 3D sont plus instables que ceux des simulations 2D, nous avons pris l'épaisseur égale à la valeur seuil 2D (Tab. 5.1). Les évolutions de l'écoulement, des champs de température et massique ont déjà été très présentées partiellement dans la section 5.1, page 87, pour ces mêmes valeurs des paramètres ; nous allons les analyser maintenant plus en détails.

La figure 5.16a donne l'évolution du nombre de Péclet massique $Pe_{sol,c}(t)$ au centre du film liquide. La lente augmentation de la courbe indique le passage d'un mode de transfert essentiellement piloté par la diffusion à celui où la convection devient dominante. Cette transition à lieu



(a) *Nombre de Péclet solutal* $Pe_{sol,c}(t)$.

(b) *Différences de température (axe gauche) et de fraction volumique de solvant (axe droit).*

(c) *Différences de température pour l'écoulement convectif et la solution diffusive.*

FIGURE 5.16 – *Évolution du nombre de Péclet solutal* $Pe_{sol,c}(t)$*, et des écarts de température et de fraction solutale entre le fond et la surface libre, au milieu du film liquide* ($e_{init} = 84\,\mu m$, $\varphi_p = 0,1$).

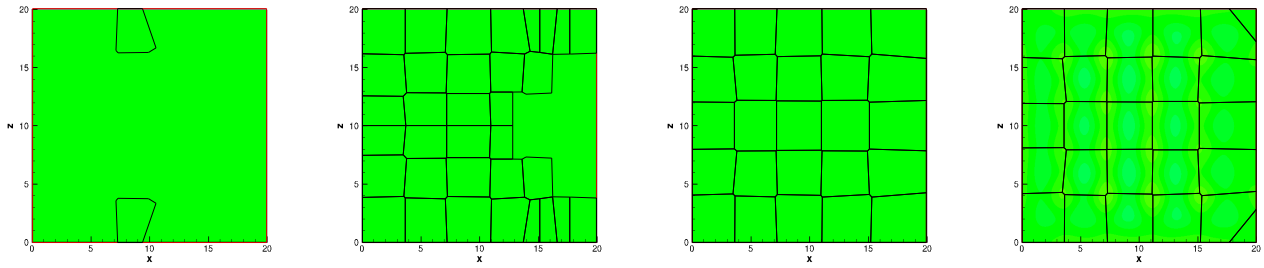
à $t = 3,86 \times 10^{-3}$, c'est-à-dire dans le régime thermique. Si nous examinons la figure 5.16b, nous constatons que l'écart de température entre le fond et la surface libre, en $(X;Z) = (A/2;A/2)$, ne s'écarte que très faiblement de la solution diffusive : un agrandissement de cet écart est donné sur la figure 5.16c. Sur cette même durée, le champ massique est très fortement advecté par le fluide mis en mouvement par l'instabilité thermique. Cette advection engendre une différence de fraction volumique de solvant entre le fond et la surface libre qui s'éloigne notablement du profil massique purement diffusif (Fig. 5.16b). Sur les temps plus longs le champ thermique revient diffusif et la convection est contrôlée par les variations du champ massique.

Nous allons maintenant décrire les champs de température et de fraction de solvant à la surface libre, dans le cas du régime thermique, puis du régime massique.

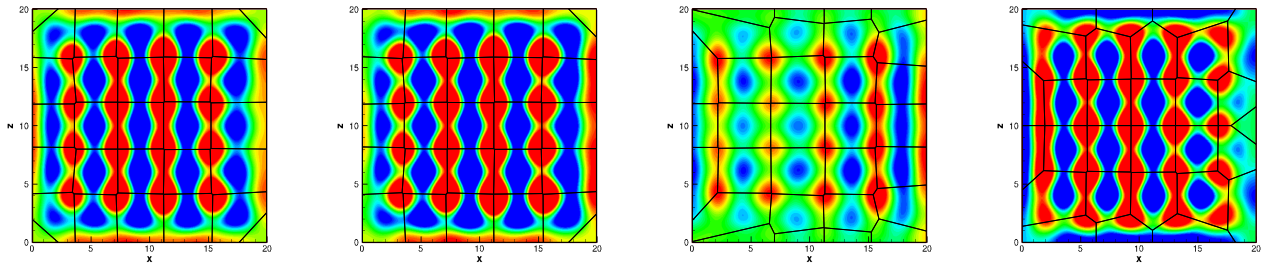
5.5.1 Convection thermique

La figure 5.17 donne les fluctuations de la température autour de $\theta_m(t)$ à la surface libre et la forme des cellules de convection reconstruites avec l'algorithme de Voronoï (voir section 3.6.1, page 60), sur l'intervalle de temps $3,75 \times 10^{-3} \leq t \leq 4,88 \times 10^{-2}$ qui correspond à l'essentiel du régime thermique. Comme l'indique l'évolution du nombre de Péclet massique au centre du film liquide $Pe_{sol,c}(t)$ (Fig. 5.16a), la vitesse augmente lentement au cours du temps : les premières cellules de convection apparaissent proche des parois latérales, de façon symétrique autour de $Z = A/2$ (Fig. 5.17a puis atteignent le cœur de la solution pour $t = 3,86 \times 10^{-3}$ (Fig. 5.17b). La valeur de $Pe_{sol,c}(t)$ augmente ensuite rapidement de façon monotone pour atteindre une valeur voisine de 2000 pour $t \approx 0,01$ (Figs. 5.16a et 5.17e). Ensuite, le nombre de Péclet massique décroit en laissant apparaître des oscillations jusqu'à un temps de $t \approx 0,05$. Ces oscillations sont visibles, par exemple, lorsque nous comparons les fluctuations de température des figures 5.17e et 5.17h, ou 5.17j et 5.17l : les régions descendantes froides sont remplacées par des zones ascendantes chaudes. Pour mieux se rendre compte de ce phénomène d'oscillation que nous observons dans le régime thermique, nous avons relevé les vitesses verticales pour 4 points situés au centre du film liquide $(A/2 \pm 1\,;\,0,5\,;\,A/2 \pm 1)$ (Fig. 5.18). Ce graphe confirme, à la fois le caractère oscillant de l'écoulement, mais également la relaxation de la convection thermique avec le temps. Nous constatons également que les relevés des vitesses sont symétriques vis-à-vis du plan $Z = A/2$ et antisymétriques par rapport au plan $X = A/2$. Tous ces résultats sont bien en accord avec les champs présentés sur la figure 5.17. Il faut noter que ce comportement oscillant n'a pas été observé pour la simulation 2D, avec une épaisseur légèrement plus importante, $e_{init} = 100\,\mu m$ (Sec. 5.4.3).

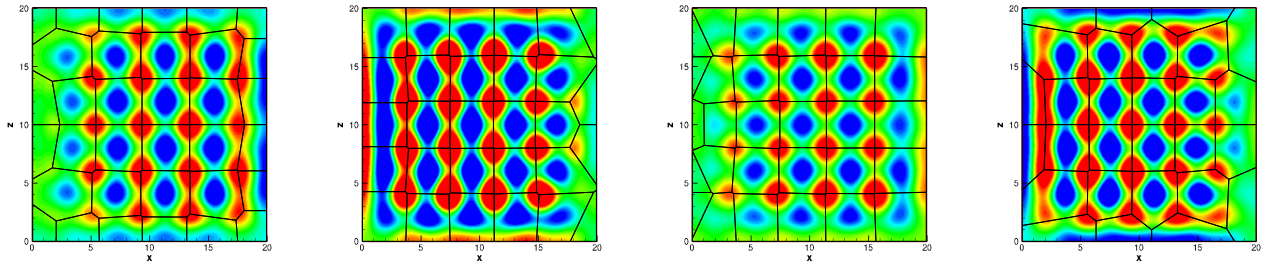
L'analyse des reconstructions de Voronoï (Fig. 5.17) montre que les cellules s'organisent plutôt selon un réseau carré, du moins lorsque la convection est importante. Le nombre de cellules convec-



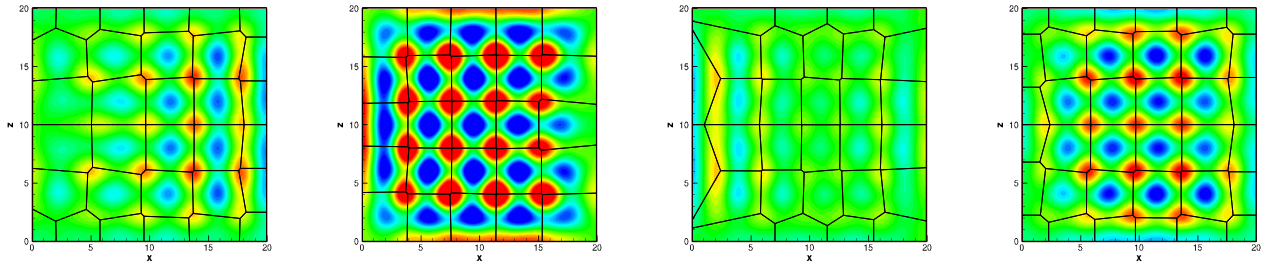
(a) $t = 3,75 \times 10^{-3}$, $\theta_m = -0.062$ (b) $t = 5,14 \times 10^{-3}$, $\theta_m = -0.082$ (c) $t = 6,92 \times 10^{-3}$, $\theta_m = -0.107$ (d) $t = 9,20 \times 10^{-3}$, $\theta_m = -0.138$



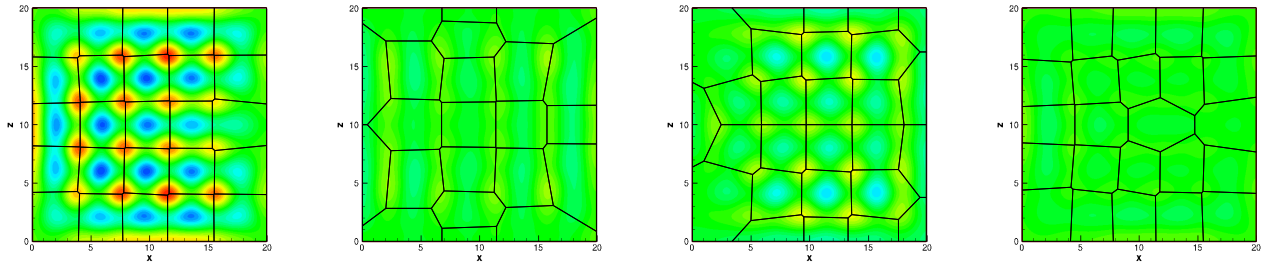
(e) $t = 1,17 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0.171$ (f) $t = 1,30 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0.188$ (g) $t = 1,46 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0.207$ (h) $t = 1,63 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0.227$



(i) $t = 1,78 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0.246$ (j) $t = 1,97 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0.267$ (k) $t = 2,13 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0.286$ (l) $t = 2,34 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0.309$



(m) $t = 2,53 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0.329$ (n) $t = 2,76 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0.352$ (o) $t = 2,99 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0.375$ (p) $t = 3,25 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0.399$



(q) $t = 3,54 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0.427$ (r) $t = 3,89 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0.457$ (s) $t = 4,32 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0.492$ (t) $t = 4,88 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0.535$

FIGURE 5.17 – *Fluctuations de la température autour de $\theta_m(t)$ à la surface libre et reconstruction des cellules convectives thermiques par un algorithme de Voronoï. Échelle de température $[-2,5 \times 10^{-4}; +2,5 \times 10^{-4}]$ ($e_{init} = 84\,\mu m$, $\varphi_p = 0,1$).*

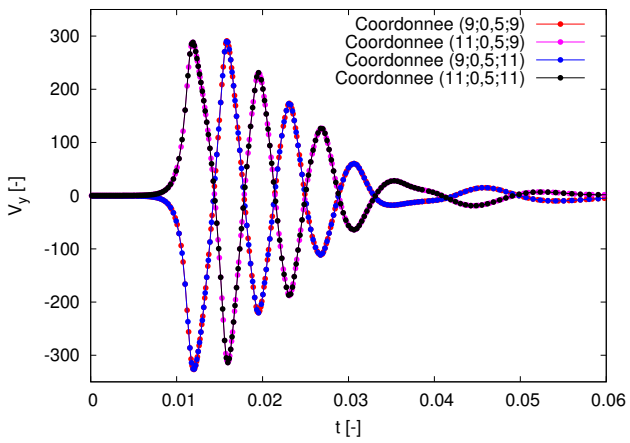


FIGURE 5.18 – *Évolution de la vitesse verticale pour 4 points de coordonnées* $(A/2 \pm 1; 0,5; A/2 \pm 1)$ *(*$e_{init} = 84\,\mu m$*,* $\varphi_p = 0,1$*).*

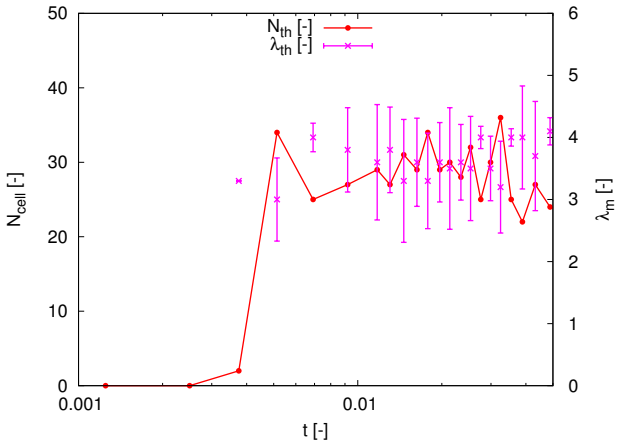


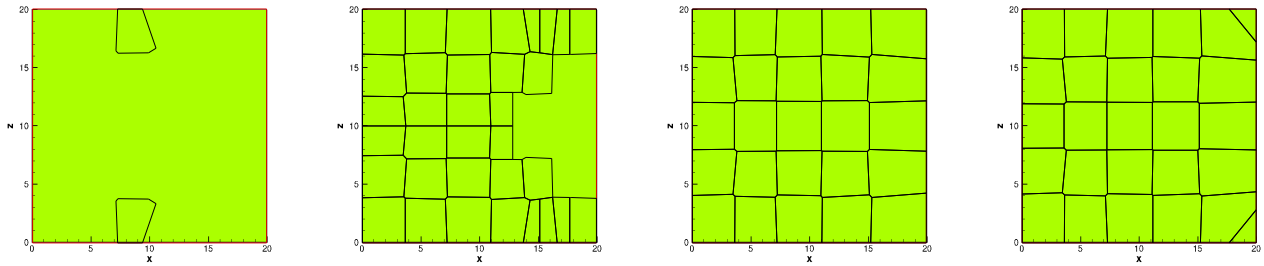
FIGURE 5.19 – *Décompte du nombre de cellules convectives dans le régime thermique (axe gauche) et taille moyenne de ces cellules (axe droit).*

tives varie faiblement autour de $N_{cell} = 30$ et leur taille moyenne est de l'ordre de $\lambda_m \approx 3,5$, une valeur bien supérieure à deux fois l'épaisseur du film liquide (Fig. 5.19). Ce résultat est cohérent avec les analyses déjà menées en 2D couplé ou en 3D purement thermique où les tailles moyennes des cellules se révèlent supérieures à la taille caractéristique de l'écoulement, c'est-à-dire l'épaisseur du film liquide.

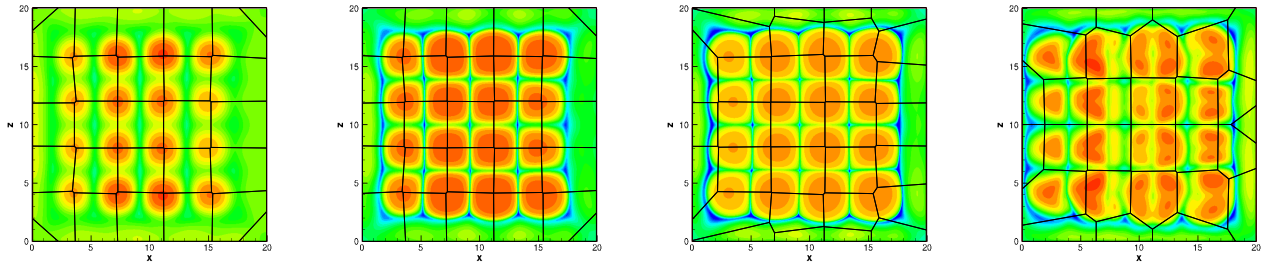
La figure 5.20 présente les fluctuations de la fraction de solvant autour de $\varphi_{s,m}(t)$ à la surface libre, dans le régime thermique. Sur le champ massique ont été superposées les cellules convectives thermiques reconstruites par l'algorithme de Voronoï (même reconstruction que sur la figure 5.17). Sur la période temporelle $t = 1,17 \times 10^{-2}$ (Fig. 5.20e) à $t = 1,46 \times 10^{-2}$ (Fig. 5.20g), les maximas de fraction volumique de solvant sont localisés aux sommets des cellules carrées, c'est-à-dire dans les lieux des vitesses ascendantes avec du fluide chaud. L'inversion de la composante verticale de la vitesse (Fig. 5.18) engendre un mélange du champ massique advecté par l'écoulement comme cela apparaît sur les figures 5.20h-5.20j. Finalement dans le régime thermique, l'évolution du champ massique à la surface libre consiste en une succession de structures qui sont, soit bien corrélées avec les cellules thermiques (cellules de Voronoï), soit très étalées dans ou à travers les cellules convectives adjacentes. Ce phénomène de mélange n'est pas observé sur le champ thermique (Fig. 5.17) car c'est lui qui pilote la convection (régime thermique). En revanche, la fraction volumique de solvant est simplement transportée. Elle subit donc toutes les variations temporelles de l'écoulement, ce qui provoque un mélange du champ massique.

5.5.2 Convection massique

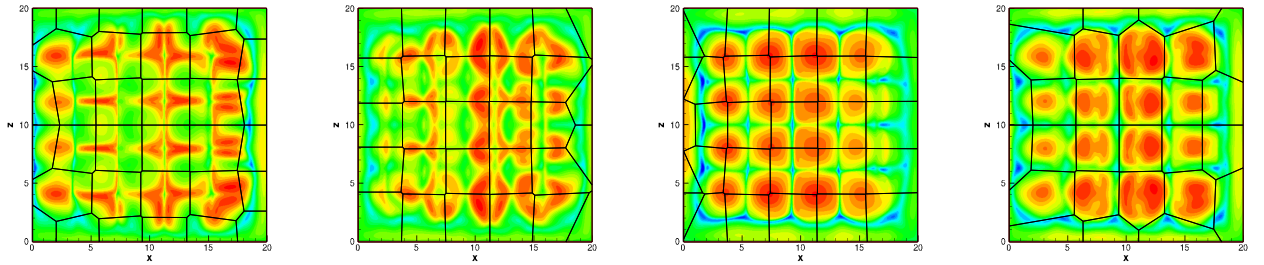
D'après la figure 5.16a, il est raisonnable de faire débuter le régime massique autour de $t = 0,1$, c'est-à-dire à partir de l'instant où la vitesse du fluide augmente à nouveau. Ce temps est similaire à celui mis en évidence pour le modèle couplé 2D et une épaisseur légèrement plus élevée, $e_{init} = 100\,\mu m$ (Fig. 5.9b, page 94) : il correspond qualitativement au moment pour lequel l'évolution du nombre de Péclet massique de la simulation couplée thermique/massique diffère de celle obtenue par le calcul effectué en figeant la fraction volumique de solvant à sa valeur initiale. Il faut cependant remarquer qu'il est bien inférieur à l'instant $t_{fin}^{analyt} = 0,26$ (Eq. (5.2)), qui est celui pour lequel la différence de température entre le fond du récipient et la surface libre diffère de moins de $0,01\%$ de l'écart maximal relevé au cours du temps. Cela montre donc que le régime massique commence bien



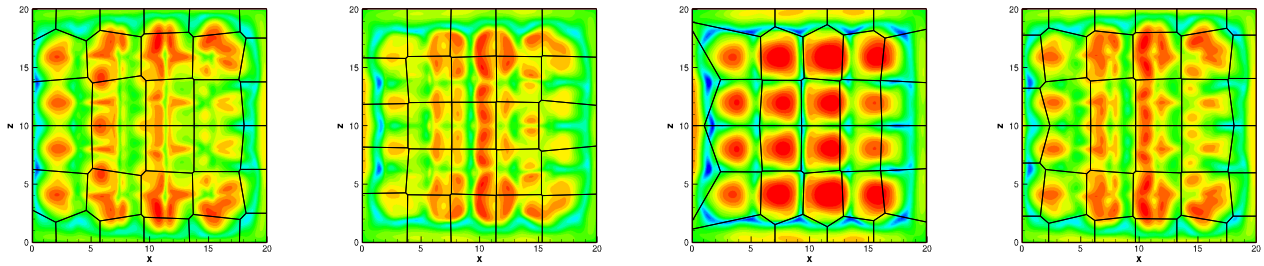
(a) $t = 3,75 \times 10^{-3}$, $\theta_m = -0,062$, $\varphi_{s,m} = 0,898$ (b) $t = 5,14 \times 10^{-3}$, $\theta_m = -0,082$, $\varphi_{s,m} = 0,898$ (c) $t = 6,92 \times 10^{-3}$, $\theta_m = -0,107$, $\varphi_{s,m} = 0,898$ (d) $t = 9,20 \times 10^{-3}$, $\theta_m = -0,138$, $\varphi_{s,m} = 0,898$



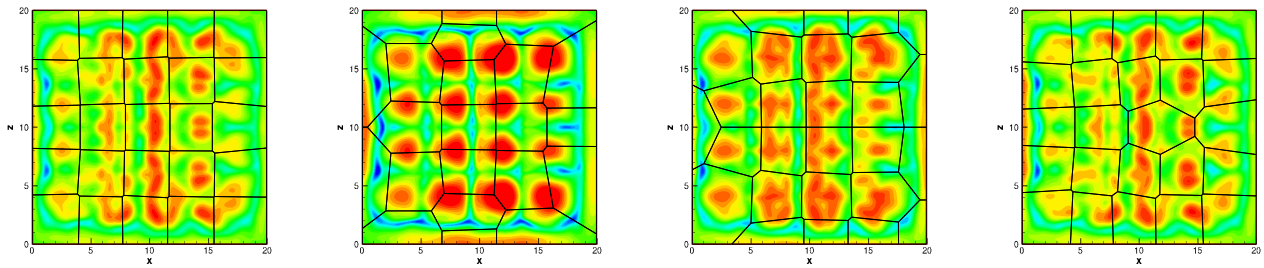
(e) $t = 1,17 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,171$, $\varphi_{s,m} = 0,898$ (f) $t = 1,30 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,188$, $\varphi_{s,m} = 0,898$ (g) $t = 1,46 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,207$, $\varphi_{s,m} = 0,898$ (h) $t = 1,63 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,227$, $\varphi_{s,m} = 0,898$



(i) $t = 1,78 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,246$, $\varphi_{s,m} = 0,897$ (j) $t = 1,97 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,267$, $\varphi_{s,m} = 0,897$ (k) $t = 2,13 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,286$, $\varphi_{s,m} = 0,897$ (l) $t = 2,34 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,309$, $\varphi_{s,m} = 0,896$



(m) $t = 2,53 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,329$, $\varphi_{s,m} = 0,896$ (n) $t = 2,76 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,352$, $\varphi_{s,m} = 0,896$ (o) $t = 2,99 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,375$, $\varphi_{s,m} = 0,896$ (p) $t = 3,25 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,399$, $\varphi_{s,m} = 0,895$



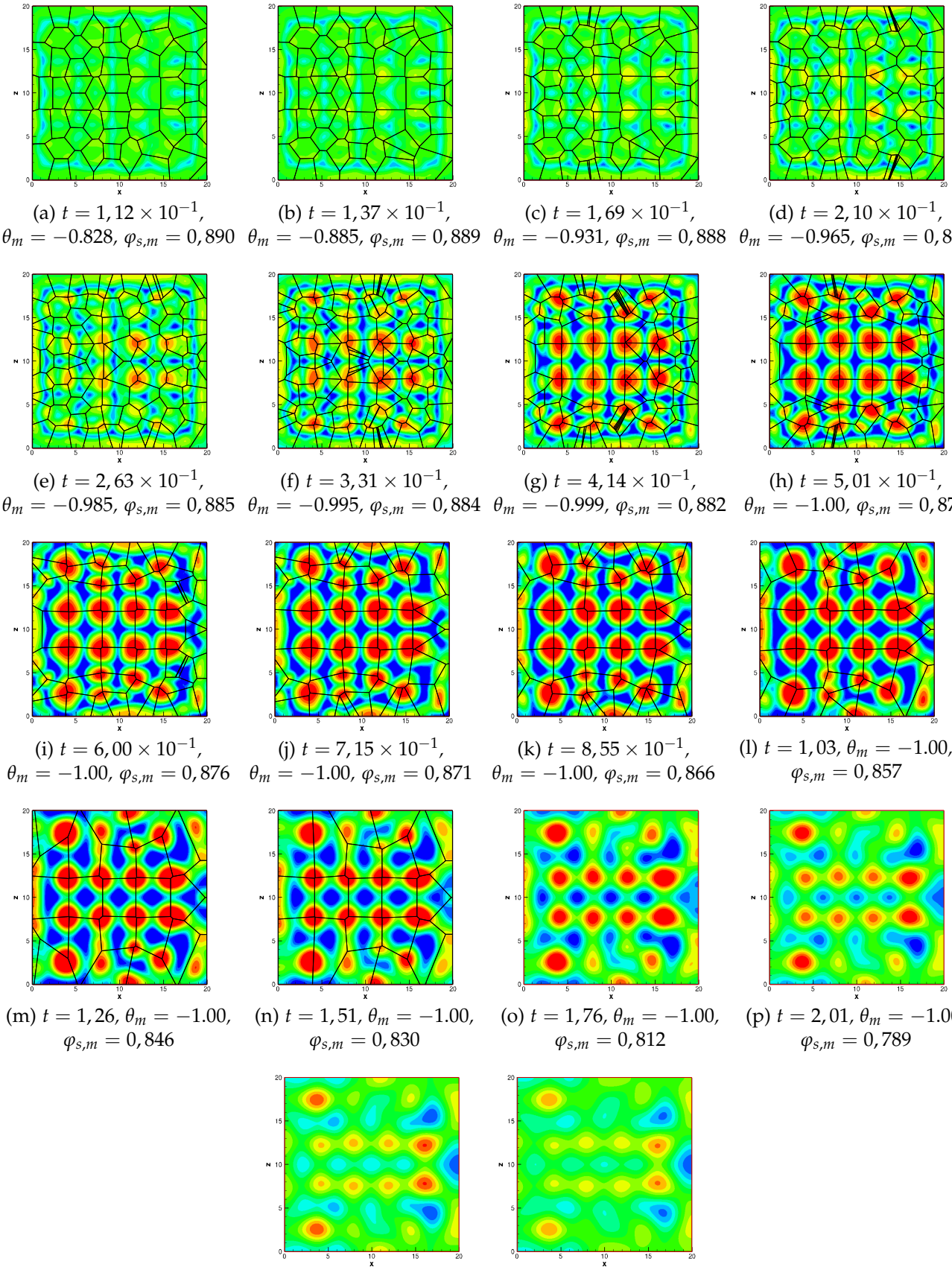
(q) $t = 3,54 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,427$, $\varphi_{s,m} = 0,895$ (r) $t = 3,89 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,457$, $\varphi_{s,m} = 0,895$ (s) $t = 4,32 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,492$, $\varphi_{s,m} = 0,894$ (t) $t = 4,88 \times 10^{-2}$, $\theta_m = -0,535$, $\varphi_{s,m} = 0,894$

FIGURE 5.20 – *Fluctuations de la fraction volumique de solvant autour de $\varphi_{s,m}(t)$ à la surface libre et reconstruction des cellules convectives thermiques par un algorithme de Voronoï. Échelle massique $[-3 \times 10^{-3}; +1,5 \times 10^{-3}]$ ($e_{init} = 84\,\mu m$, $\varphi_p = 0,1$).*

avant que le champ thermique soit parfaitement homogène.

La figure 5.21 présente, dans le régime massique, les fluctuations de la fraction volumique de solvant autour de $\varphi_{s,m}(t)$ à la surface libre. En s'appuyant sur les minimas de fraction de solvant, nous avons également reconstruit les structures engendrées par la convection massique, à l'aide d'un algorithme de Voronoï. Comme dans le régime thermique, nous retrouvons bien la symétrie autour du plan $Z = A/2$, mais pas celle autour du plan $X = A/2$. La convection massique, qui apparaît à la suite du régime thermique, résulte des perturbations induites par l'écoulement sur le champ massique (Fig. 5.20t). Après une période de réorganisation des cellules convectives massiques (Figs. 5.21a-5.21f), l'écoulement se dispose en cellules carrées, relativement bien agencées dans le film liquide (Figs. 5.21g-5.21n). Les vitesses descendantes au centre des cellules engendrent une accumulation de la fraction volumique de polymère à la surface libre. Pour $1,51 < t < 1,76$, le nombre de Péclet massique à la surface libre devient inférieur à l'unité, ce qui explique l'absence de cellules convectives sur les figures 5.21o à 5.21r. Cet intervalle de temps est conforme à ce que donne l'évolution du nombre de Péclet massique au centre du film $Pe_{sol,c}(t)$: le retour à une solution transitoire diffusive a lieu pour $t = 1,68$ (Fig. 5.16a). Malgré la disparition de l'écoulement fluide, les inhomogénéités massiques à la surface libre relaxent très lentement dans la solution. Cette évolution très lente est due à la très grande valeur du temps de diffusion massique.

La figure 5.22 indique que le nombre de cellules convectives augmente fortement sur l'intervalle $t \in [\approx 0,15\,;\, \approx 0,35]$. Cet intervalle de temps coïncide avec la période où les variations massiques sont intensifiées par advection du fluide ; les longueurs caractéristiques des cellules convectives diminuent pour atteindre une valeur moyenne de 2. Par la suite, les cellules s'organisent pour former un réseau en carrés : simultanément à la diminution du nombre de cellules convectives, λ_m augmente lentement pour atteindre une valeur proche de 4.



(a) $t = 1,12 \times 10^{-1}$, $\theta_m = -0.828$, $\varphi_{s,m} = 0,890$
(b) $t = 1,37 \times 10^{-1}$, $\theta_m = -0.885$, $\varphi_{s,m} = 0,889$
(c) $t = 1,69 \times 10^{-1}$, $\theta_m = -0.931$, $\varphi_{s,m} = 0,888$
(d) $t = 2,10 \times 10^{-1}$, $\theta_m = -0.965$, $\varphi_{s,m} = 0,887$
(e) $t = 2,63 \times 10^{-1}$, $\theta_m = -0.985$, $\varphi_{s,m} = 0,885$
(f) $t = 3,31 \times 10^{-1}$, $\theta_m = -0.995$, $\varphi_{s,m} = 0,884$
(g) $t = 4,14 \times 10^{-1}$, $\theta_m = -0.999$, $\varphi_{s,m} = 0,882$
(h) $t = 5,01 \times 10^{-1}$, $\theta_m = -1.00$, $\varphi_{s,m} = 0,879$
(i) $t = 6,00 \times 10^{-1}$, $\theta_m = -1.00$, $\varphi_{s,m} = 0,876$
(j) $t = 7,15 \times 10^{-1}$, $\theta_m = -1.00$, $\varphi_{s,m} = 0,871$
(k) $t = 8,55 \times 10^{-1}$, $\theta_m = -1.00$, $\varphi_{s,m} = 0,866$
(l) $t = 1,03$, $\theta_m = -1.00$, $\varphi_{s,m} = 0,857$
(m) $t = 1,26$, $\theta_m = -1.00$, $\varphi_{s,m} = 0,846$
(n) $t = 1,51$, $\theta_m = -1.00$, $\varphi_{s,m} = 0,830$
(o) $t = 1,76$, $\theta_m = -1.00$, $\varphi_{s,m} = 0,812$
(p) $t = 2,01$, $\theta_m = -1.00$, $\varphi_{s,m} = 0,789$
(q) $t = 2,26$, $\theta_m = -1.00$, $\varphi_{s,m} = 0,759$
(r) $t = 2,51$, $\theta_m = -1.00$, $\varphi_{s,m} = 0,720$

FIGURE 5.21 – *Fluctuations de la fraction volumique de solvant autour de $\varphi_{s,m}(t)$ à la surface libre et reconstruction des cellules convectives massiques par un algorithme de Voronoï. Échelle massique $[-5 \times 10^{-3}; +5 \times 10^{-3}]$ ($e_{init} = 84\,\mu m$, $\varphi_p = 0,1$.*

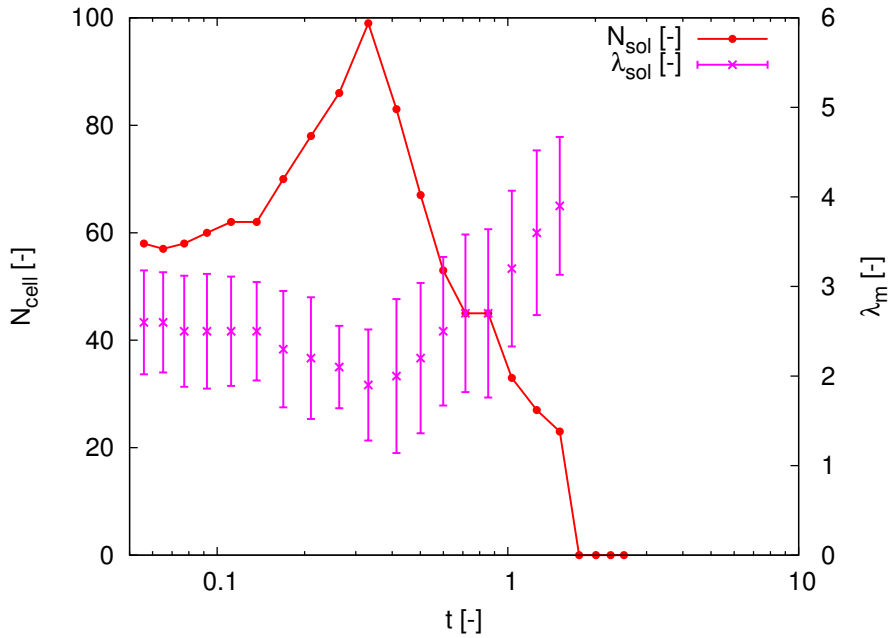


FIGURE 5.22 – *Nombre de cellules convectives d'origine massique et leurs longueurs d'ondes pour* $e_{init} = 84\,\mu m$, $\varphi_p = 10^{-1}$, $A = 20$

Conclusion générale

Dans ce mémoire, nous nous sommes intéressés aux transferts de chaleur et de matière dans des films liquides, contenant un mélange de Polyisobutylène et de toluène, mis en contact avec l'atmosphère. La pression du solvant à l'interface étant inférieure à celle de sa vapeur saturante, le toluène liquide s'évapore. Ce processus nécessite un apport d'énergie latente qui est prélevée au niveau de l'interface liquide sous forme sensible. Les diminutions de la température et de la fraction volumique de solvant provoquent des gradients qui vont diffuser au cours du temps dans le film liquide et, selon l'épaisseur du film et la fraction initiale de polymère (viscosité), engendrer un mouvement fluide suffisant pour advecter les champs thermique et massique.

Nos travaux ont principalement porté sur l'étude de la physique et l'identification des paramètres qui permettent de transiter d'un mode de transfert essentiellement diffusif à un écoulement convectif piloté par, soit les écarts de température, soit les variations de concentration de solvant dans le film fluide. La motivation d'une telle étude réside dans l'observation des dépôts, obtenus à la fin de l'évaporation, qui semblent conserver l'empreinte de la convection qui est apparue antérieurement dans la solution liquide.

Pour répondre à cet objectif, le mémoire est scindé en 5 chapitres.

— Dans le premier chapitre sont présentés les principaux travaux de la littérature permettant de situer le travail réalisé dans cette thèse. En particulier, notre contribution prolonge les études expérimentales et numériques antérieures sur la solution de Polyisobutylène/toluène qui sont décrites en détails dans cette partie [51, 56, 57, 18].

— Le second chapitre est dédié à la mise en place des modèles mathématiques et numériques, puis à leur validation. En partant, à la fois des équations générales de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et des espèces pour une solution binaire, et des relations de bilan à l'interface entre un liquide et un gaz, nous avons construit trois modèles mathématiques en nous appuyant sur des hypothèses et des approximations bien identifiées. En particulier, seul la région liquide est résolue : les transferts de masse, de quantité de mouvement et d'énergie avec l'extérieur sont principalement modélisés par des coefficients d'échange dont les valeurs numériques sont issues de travaux expérimentaux. Le premier modèle tient compte des transferts couplés de masse et d'énergie dans la solution liquide. L'avantage de ce modèle est qu'il est le plus général, mais il s'avère également le plus coûteux à résoudre en terme numérique. C'est la raison pour laquelle deux autres modèles simplifiés ont été développés en s'appuyant sur la séparation des échelles de temps de diffusion thermique et massique.
  - Le premier modèle simplifié s'applique sur les temps courts et permet d'étudier les transferts thermiques : c'est le modèle thermique pur. Il repose sur une approximation d'une répartition constante et homogène du solvant dans la solution et néglige les variations d'épaisseur du film liquide au cours du temps.
  - Le second modèle simplifié s'intéresse aux temps longs de la diffusion massique : c'est le modèle massique pur. Dans cette approche, le champ thermique est supposé avoir atteint l'équilibre qui correspond à une température de la solution telle que le flux de chaleur perdu par évaporation est exactement compensé par celui gagné à la surface libre par l'échange thermique convectif avec l'environnement. Dans ce modèle, la fraction de solvant

évolue ce qui nécessite de prendre en compte, à la fois la variation de la viscosité avec la concentration en polymère, et également la diminution de l'épaisseur du film liquide qui est liée à la lente évaporation du toluène.

Les méthodes numériques sont ensuite brièvement présentées avant qu'une étape de validation du code numérique ne soit proposée autour de problèmes classiques de mécanique des fluides.

Les trois chapitres suivants sont dédiés aux résultats. Du fait de la loi de viscosité spécifique à la solution PIB/toluène, les paramètres que nous avons considérés pour rechercher les instabilités sont toutes physiques : ce sont l'épaisseur initiale et la fraction initiale de polymère, ou de façon équivalente la viscosité initiale de la solution.

Pour les trois modèles établis précédemment, l'étude de la transition entre une solution liquide pilotée essentiellement par les transferts diffusifs à celle où la convection devient dominante est réalisée.

— Le troisième chapitre porte sur le modèle thermique d'évaporation.

Il débute par une partie introductive qui souligne le rôle primordial joué par les perturbations sur la naissance d'un éventuel écoulement convectif lorsque la solution étudiée évolue de façon transitoire entre deux états de repos. Pour s'affranchir d'un déclenchement dépendant du schéma et des différentes erreurs d'origine numérique, il est indispensable de contrôler les perturbations appliquées à la solution fluide. Dans cette optique, et contrairement aux travaux antérieurs, dans lesquels la déstabilisation de l'écoulement était provoquée par l'ajout d'une perturbation initiale aléatoire sur les champs de vitesse ou de température [51, 56], nous avons opté pour l'introduction d'un germe de déstabilisation plus physique, basé sur un échange thermique convectif sur les parois latérales.

Nous nous sommes ensuite intéressés à la détermination du critère permettant de définir la transition entre une solution diffusive et un écoulement convectif. Pour le modèle thermique, nous avons opté sur la mesure de l'évolution du nombre de Péclet thermique qui caractérise le rapport entre la vitesse du fluide et celle de diffusion thermique sur l'épaisseur du film liquide. Pour s'affranchir des écoulements induits par les transferts thermiques convectifs au parois latérales, ce nombre n'est calculé que dans la région centrale du film liquide. Si le maximum du nombre de Péclet thermique excède l'unité au cours du temps, la solution est dite convective ; dans le cas contraire, elle est qualifiée de diffusive. Pour une épaisseur donnée, la viscosité critique est celle qui permet d'atteindre au cours du temps un nombre de Péclet unitaire sans jamais le dépasser.

Après avoir étudié l'influence du maillage et du pas de temps sur la viscosité critique et le temps pour lequel le nombre de Péclet atteint l'unité, nous avons déterminé les valeurs seuils pour des simulations bidimensionnelles et tridimensionnelles, pour trois épaisseurs et différentes valeurs de l'allongement du film liquide. Ce travail a été mené avec un échange thermique convectif aux parois, mais également pour des parois adiabatiques et l'ajout d'une perturbation initiale sur le champ de température. Ces travaux nous montrent que (i) les simulations 3D sont plus instables que celles 2D pour des parois diathermes, (ii) l'apparition de la convection au centre du film fluide dépend de l'allongement pour des parois diathermes, (iii) les viscosités seuils sont très peu sensibles à l'allongement pour des parois adiabatiques. Globalement nos résultats sont conformes à ceux issus des travaux de la littérature [18, 51, 57].

Dans le cas des simulations bidimensionnelles avec des échanges convectifs aux parois latérales, nous avons construit des diagrammes espace-temps afin de comprendre comment les perturbations engendrées au voisinage des frontières se propagent vers le cœur de l'écoulement. Nous avons montré que les vitesses de propagation des perturbations étaient des fonctions croissantes des nombres de Marangoni et Rayleigh. Le dénombrement des cellules convectives au cours du temps a également permis de montrer leur lente augmentation,

contrairement à ce qui a été observé pour des parois adiabatiques et une perturbation initiale aléatoire.
Pour analyser les simulations tridimensionnelles, nous avons relevé le champ thermique à la surface libre. Compte tenu de la grande valeur du nombre de Prandtl, qui indique une advection importante de la température, nous avons reconstruit la trace des cellules de convection à la surface libre en utilisant sur des diagrammes de Voronoï construits sur les minima locaux de température. Nous avons ainsi caractérisé le nombre et les tailles des cellules au cours du temps. En particulier, nous avons montré que la forme des structures convectives qui apparaissent pour des parois diathermes sont constituées de rouleaux parallèles aux frontières et de cellules dans les coins et le cœur du film liquide. En revanche pour des parois adiabatiques et l'utilisation de perturbations initiales sur le champ thermique, les structures convectives sont des cellules polygonales de forme plus ou moins complexe, plus régulières proche des parois que dans le centre du film liquide.

— Le quatrième chapitre concerne les résultats du modèle purement massique. Pour ces simulations numériques, les perturbations de la solution diffusive ont été imposées à l'instant initial, par l'ajout de fluctuations aléatoires au champ massique de solvant.
Sur la base de calculs bidimensionnels et tridimensionnels, nous avons établi les épaisseurs initiales du film liquide qui permettent de définir la transition entre un champ diffusif et convectif, pour plusieurs valeurs de la fraction volumique initiale de polymère (viscosité initiale). Ces travaux ont été précédés par une étude du maillage et du pas de temps garantissant une précision suffisante au calcul des transitions. La plus petite épaisseur de film relevée est d'une dizaine de micromètres pour $\varphi_p = 0,01$. Lorsque la solution tend vers le solvant pur, ou lorsque la fraction volumique de polymère atteind 10%, l'épaisseur du film augmente considérablement. Pour chacune des épaisseurs critiques, le temps pour lequel le nombre de Péclet massique atteint l'unité a été relevé : ce temps est bien supérieur au temps de diffusion thermique. Compte tenu de la nature des perturbations, les seuils entre les simulations 2D et 3D sont très proches. Nos résultats ont également été comparés à ceux de Trouette et al. [58] et ont montré un relatif bon accord compte tenu des critères légèrement différents pour caractériser la transition. Pour les faibles fractions initiales de polymère ($\varphi_p \leq 0,01$), nous avons montré que le nombre de Marangoni est bien le paramètre pertinent pour déterminer l'épaisseur initiale critique pour le problème d'évaporation du mélange de Polyisobutylène/toluène.
Enfin, nous avons étudié l'évolution en espace et en temps des structures convectives dans les cas 2D et 3D. Dans le cas bidimensionnel, les cellules apparaissent quasiment toutes simultanément et elles sont d'une taille plus petite qu'en thermique. Pour les simulations tridimensionnelles, les cellules identifiées à la surface libre sont de formes polygonales. Elles n'apparaissent pas au voisinage des parois comme dans le cas thermique, mais n'importe où dans le film fluide.

— Le cinquième et dernier chapitre porte sur des simulations réalisées pour un modèle couplé thermique/massique. Comme dans le modèle thermique, ce sont les échanges convectifs aux parois latérales qui permettent de perturber la solution diffusive. Pour que l'écoulement induit par les transferts thermiques aux frontières ne soit pas prédominant, le coefficient d'échange a été très fortement réduit (augmentation de la résistance de conduction de la paroi). Avant d'identifier les épaisseurs seuils, nous avons déterminé une loi de variation du pas de temps permettant, tout à la fois de simuler fidèlement la naissance des instabilités dans le régime thermique sur les temps courts, mais également de représenter correctement les transferts dans le régime massique sur les temps longs.
Suite à la détermination du pas de temps et du maillage, nous avons recherché les épaisseurs critiques dans les régimes thermique et massique, pour une large gamme de la fraction volumique de polymère. Lorsqu'il est possible d'identifier une épaisseur critique dans le régime massique, la valeur obtenue est très proche de celle déterminée par le modèle massique pur. La

nature de la déstabilisation, aléatoire à l'instant initial ou d'échange thermique convectif aux parois latérales, ne modifie donc pas substantiellement les seuils de transition entre les solutions purement diffusives ou celles dans lesquelles la convection apparaît de façon transitoire. Lorsque l'épaisseur critique dans le régime massique dépasse celle dans le régime thermique, il n'est plus possible d'identifier la transition massique diffusif/convectif : l'instabilité massique apparaît alors que la convection thermique est toujours dominante. Dans le cas où la transition massique diffusif/convectif peut être définie, les instabilités émergent de la même façon que dans la situation thermique : elles naissent d'abord au voisinage des parois, où un échange thermique convectif est imposé, puis se propagent dans le cœur du film liquide.
Lorsque la fraction volumique de polymère est élevée,$\varphi_s = 0,1$, nous avons étudié le couplage entre le début du régime massique avec la fin du régime thermique. Ce travail s'est appuyé sur du tracé de la vitesse horizontale à la surface libre au cours du temps (diagramme espace-temps pour la simulation 2D) et la représentation de l'évolution des champs de température et de fraction de solvant à l'interface (simulation 3D). Pour le calcul tridimensionnel, une reconstruction des cellules d'origine thermique et massique a été réalisée par l'algorithme de Voronoï. Dans le cas de la simulation numérique tridimensionnelle, nous avons montré que la convection thermique relaxe à travers un régime oscillant qui a pour effet de mélanger les panaches massiques ; cette dynamique oscillatoire n'a pas été relevée pour le calcul 2D. Les cellules convectives massiques sont globalement plus petites que les cellules thermiques. Dans le cas 3D, elles s'organisent globalement sur un réseau carré qui est globalement plus régulier dans le régime thermique que massique. Enfin, les inhomogénéités massiques à la surface libre persistent relativement longtemps après la fin de la convection massique.

Perspectives

Dans la continuité immédiate de ce travail, nous souhaitons réaliser des simulations avec le modèle couplé thermique/massique pour des épaisseurs initiales du film liquide bien supérieures aux valeurs critiques. Ces travaux permettront de mieux mettre en évidence le couplage entre les modes de convection thermiques et massiques que lorsque nous choisissons des paramètres proche du seuil.

A plus long terme, il faudra envisager de relaxer les nombreuses approximations physiques qui ont été appliquées sur les équations de bilan et les transferts à l'interface (Sec. 2.2).

Parmi celles-ci, nous pourrions d'abord commencer par tenir compte de la dépendance des propriétés dans les fractions de solvant en utilisant par exemple les équations de Filippov [24] et de Teja [50]. Pour être également cohérent, l'approximation de la fraction massique par celle volumique devra être abandonnée.

Pour améliorer la simulation de l'évaporation, il est également indispensable de s'affranchir de la modélisation des transferts à l'interface par l'utilisation de coefficients d'échange et d'un flux d'évaporation constant. Pour cela, il est nécessaire de simuler l'écoulement et les transferts du mélange gazeux air/solvant qui prend place au dessus de l'interface de la solution. Les relations de saut à travers l'interface sont déjà indiquées dans ce mémoire. Il serait peut-être intéressant de faire une étude du nombre de Gukhman pour ce problème [46].

Lorsque les effets stabilisants liés à la tension de surface et au poids du fluide diminue par rapport aux contraintes visqueuses (voir Eq. (2.20)) la courbure de l'interface ne peut plus être négligée. Il s'avère alors indispensable de tenir compte de la déformation de l'interface en utilisant une méthode numérique appropriée. Si les déformation sont faibles, un suivi de l'interface par le maillage peut être envisagé. Pour les plus grandes déformations, l'interface pourra être modélisée, par une méthode de Volumes Of Fluids, ou tout autre méthode similaire.

Dans un processus complet d'évaporation, l'hypothèse d'un mélange idéal devra être relaxée : un modèle donnant l'activité du solvant en fonction de sa fraction sera alors utilisé. La suppression de

cette condition nécessitera également de retravailler sur le lien entre la fraction massique et la fraction volumique.

Avec ce modèle complet, nous devrions être en mesure de mieux comprendre le lien qui existe entre la convection qui peut naître dans la solution liquide et les irrégularités du dépôt qui semblent être identifiées à la fin du processus de séchage [4].

A

Annexes

Sommaire

A.1 Condition de saut de la contrainte à l'interface 115

A.1 Condition de saut de la contrainte à l'interface

L'interface entre deux fluides non miscibles se comporte comme une membrane physique de tension superficielle γ. Soient $\mathcal{A}$ l'aire de cette membrane de surface $\mathcal{S}$, et $\mathcal{C}$ son contour. On note $\overrightarrow{n}$ le vecteur unitaire dirigé du fluide 1 au fluide 2 et $\overrightarrow{t}$ le vecteur tangent. La force de tension de surface agissant sur une longueur élémentaire dl du contour est proportionnelle à la tension superficielle γ et à dl, et est portée par un vecteur normal à $\overrightarrow{t}$ et $\overrightarrow{n}$:

$$d\overrightarrow{F_\gamma} = \gamma dl\ \overrightarrow{t} \wedge \overrightarrow{n}$$

Pour faciliter les calculs, l'expression précédente est réécrite en utilisant les notations tensorielles cartésiennes :

$$dF_{\gamma_i} = \gamma \varepsilon_{i,j,k} t_j n_k dl$$

avec $\varepsilon_{i,j,k}$ le symbole de Levi-Civita vérifiant

$$\varepsilon_{i,j,k} = \begin{cases} +1, & \text{si } (i,j,k) \in \{(1,2,3);(2,3,1);(3,1,2)\} \\ -1, & \text{si } (i,j,k) \in \{(3,2,1);(2,1,3);(1,3,2)\} \\ 0, & \text{si } i=j \text{ ou } i=k \text{ ou } j=k \end{cases}$$

Pour i fixé, on note $a_j = \gamma \varepsilon_{i,j,k} n_k$. La force de tension de surface totale s'écrit alors

$$F_{\gamma_i} = \oint_{\mathcal{C}} \gamma \varepsilon_{i,j,k} t_j n_k\, dl = \oint_{\mathcal{C}} a_j t_j\, dl = \oint_{\mathcal{C}} \overrightarrow{a}.\overrightarrow{dl}$$

En utilisant le théorème de Stokes,

$$\oint_{\mathcal{C}} \overrightarrow{a}.\overrightarrow{dl} = \int_{\mathcal{S}} (\nabla \wedge \overrightarrow{a}).\overrightarrow{n}\, dS$$

nous obtenons

$$\begin{aligned} F_{\gamma_i} &= \int_{\mathcal{S}} \varepsilon_{m,p,q} \frac{\partial a_q}{\partial x_p} n_m\, dS \\ &= \int_{\mathcal{S}} \varepsilon_{m,p,q} \frac{\partial \gamma \varepsilon_{i,q,k} n_k}{\partial x_p} n_m\, dS \\ &= \int_{\mathcal{S}} \varepsilon_{m,p,q} \varepsilon_{i,q,k} \frac{\partial \gamma n_k}{\partial x_p} n_m\, dS \\ &= \int_{\mathcal{S}} \varepsilon_{m,p,q} \varepsilon_{i,q,k} \left(\frac{\partial \gamma}{\partial x_p} n_k + \gamma \frac{\partial n_k}{\partial x_p} \right) n_m\, dS \\ &= -\int_{\mathcal{S}} \varepsilon_{m,p,q} \varepsilon_{i,k,q} \left(\frac{\partial \gamma}{\partial x_p} n_k + \gamma \frac{\partial n_k}{\partial x_p} \right) n_m\, dS \end{aligned}$$

En utilisant l'identité $\varepsilon_{m,p,q}\varepsilon_{i,k,q} = \delta_{mi}\delta_{pk} - \delta_{mk}\delta_{pi}$, avec δ_{ij} le symbol de Kronecker qui vaut 1 si $i = j$ et sinon 0, on obtient :

$$\begin{aligned} F_{\gamma_i} &= \int_{\mathcal{S}} \delta_{mk}\delta_{pi} \left(\frac{\partial \gamma}{\partial x_p} n_k + \gamma \frac{\partial n_k}{\partial x_p} \right) n_m\, dS - \int_{\mathcal{S}} \delta_{mi}\delta_{pk} \left(\frac{\partial \gamma}{\partial x_p} n_k + \gamma \frac{\partial n_k}{\partial x_p} \right) n_m\, dS \\ &= \int_{\mathcal{S}} \left(\frac{\partial \gamma}{\partial x_i} n_k + \gamma \frac{\partial n_k}{\partial x_i} \right) n_k\, dS - \int_{\mathcal{S}} \left(\frac{\partial \gamma}{\partial x_k} n_k + \gamma \frac{\partial n_k}{\partial x_k} \right) n_i\, dS \end{aligned}$$

En utilisant les relations $n_k n_k = 1$, $(\partial n_k)/(\partial x_k) = \nabla.\overrightarrow{n}$ et $n_k(\partial n_k)/(\partial x_i) = (\partial n_k n_k/2)/(\partial x_i) = 0$, la relation précédente donne :

$$F_{\gamma_i} = \int_{\mathcal{S}} \left(\frac{\partial \gamma}{\partial x_i} - n_k \frac{\partial \gamma}{\partial x_k} n_i \right) dS - \int_{\mathcal{S}} \gamma (\nabla.\overrightarrow{n}) n_i\, dS$$

En revenant à une expression vectorielle, la force de tension de surface s'exprime par

$$\overrightarrow{F_\gamma} = \int_{\mathcal{S}} \left(\nabla\gamma - (\overrightarrow{n}.\nabla\gamma)\,\overrightarrow{n}\right)\, dS - \int_{\mathcal{S}} \gamma(\nabla.\overrightarrow{n})\,\overrightarrow{n}\, dS$$

En notant $\nabla_t(\cdot) = \nabla(\cdot) - (\overrightarrow{n}.\nabla(\cdot))\,\overrightarrow{n}$ le gradient dans le plan tangent à l'interface, la force de tension de surface s'écrit donc simplement :

$$\overrightarrow{F_\gamma} = \int_{\mathcal{S}} \nabla_t\gamma\, dS - \int_{\mathcal{S}} \gamma(\nabla.\overrightarrow{n})\,\overrightarrow{n}\, dS \tag{A.1}$$

Bibliographie

[1] S. Albensoeder et H.C. Kuhlmann. Accurate three-dimensional lid-driven cavity flow. *Journal of Computational Physics*, 206(2) :536 – 558, 2005. (Cité pages 33 et 34.)

[2] A.Pichard. Toluène. Rapport technique, INERIS, Novembre 2005. (Cité page 37.)

[3] Pauline Assemat. *Dynamique non-linéaire des écoulements confinés : application à l'instabilité de Marangoni-Bénard et aux écoulements entre surfaces texturées.* PhD thesis, 2008. (Cité page 6.)

[4] N. Bassou et Y. Rharbi. Role of Bénard-Marangoni instabilities during solvent evaporation in polymer surface corrugations. *Langmuir*, 25(1) :624–632, 2009. (Cité pages ix, 1, 8, 9 et 111.)

[5] D. J. Benson. *An Efficient, accurate, simple ALE method for non linear finite element programs*. San Diego : University of California, 1987. (Cité page 32.)

[6] R. B. Bird, W. E. Stewart, et E. N. Lightfoot. *Transport Phenomena, 2nd Edition*. John Wiley & Sons, 2001. (Cité page 15.)

[7] L. M. Blair et J. A. Quinn. The onset of cellular convection in a fluid layer with time-dependent density gradients. *Journal of Fluid Mechanics*, 36 :385–400, 4 1969. (Cité pages 1, 6 et 35.)

[8] O. Botella et R. Peyret. Benchmark spectral results on the lid-driven cavity flow. *Computers & Fluids*, 27(4) :421 – 433, 1998. (Cité page 33.)

[9] C. Bouchard. *Sechage d'un vernis polymère : analyse globale du procede industriel et description locale du film*. PhD thesis, Université Paris VI - Pierre et Marie Curie, 1997. (Cité page 35.)

[10] H. Brenner. Elementary kinematical model of thermal diffusion in liquids and gases. *Phys. Rev. E*, 74 :036306, Sep 2006. (Cité page 10.)

[11] E. Bringuier. La thermodiffusion. *Pour la Science*, (366) :86 – 91, Avril 2008. (Cité pages ix, 10 et 15.)

[12] P. Cavadini, J. Krenn, P. Scharfer, et W. Schabel. Investigation of surface deformation during drying of thin polymer films due to Marangoni convection. *Chemical Engineering and Processing : Process Intensification*, 64(0) :24 – 30, 2013. (Cité page 9.)

[13] A. Charreau et R. Cavaillé. Séchage. théorie et calculs. *Techniques de l'ingénieur*, j2480 :2–22, 1995. (Cité page 5.)

[14] E. Chénier, R. Eymard, R. Herbin, et O. Touazi. Collocated finite volume schemes for the simulation of natural convective flows on unstructured meshes. *International Journal for Numerical Methods in Fluids*, 56(11) :2045–2068, 2008. (Cité page 68.)

[15] E. Chénier, R. Eymard, et O. Touazi. Numerical results using a colocated finite-volume scheme on unstructured grids for incompressible fluid flows. *Numerical Heat Transfer, Part B : Fundamentals*, 49(3) :259–276, 2006. (Cité page 68.)

[16] J.M. Delhaye. Jump conditions and entropy sources in two-phase systems. local instant formulation. *International Journal of Multiphase Flow*, 1(3) :395 – 409, 1974. (Cité page 16.)

[17] J. Donea, A. Huerta, J.-P. Ponthot, et A. Rodrìguez-Ferran. Encyclopedia of computational mechanics. volume 1, Chapitre 14 : Arbitrary Lagrangian - Eulerian Methods, page 14. Wiley, 2004. (Cité page 32.)

[18] F Doumenc, T Boeck, E Chénier, B Guerrier, M Rossi, et al. Stability boundaries for transient evaporative rayleigh-bénard-marangoni convection. Dans *EUROTHERM Seminar Nr. 84*, 2009. (Cité pages xi, 67, 68, 69, 107 et 108.)

[19] F. Doumenc, T. Boeck, B. Guerrier, et M. Rossi. Transient Rayleigh-Bénard-Marangoni convection due to evaporation : a linear non-normal stability analysis. *Journal of Fluid Mechanics*, 648 :521–539, 2010. (Cité pages 11 et 36.)

[20] F. Doumenc, E. Chénier, B. Trouette, T. Boeck, C. Delcarte, B. Guerrier, et M. Rossi. Free convection in drying binary mixtures : Solutal versus thermal instabilities. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 63(0) :336 – 350, 2013. (Cité pages 21 et 78.)

[21] F. Doumenc, B. Guerrier, et C. Allain. Mutual diffusion coefficient and vapor-liquid equilibrium data for the system Polyisobutylene + Toluene. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 50(3) : 983–988, 2005. (Cité pages 21, 24 et 71.)

[22] Frédéric Doumenc, C Iorio, Guillaume Toussaint, Benoît Scheid, Béatrice Guerrier, et Catherine Allain. Caractérisation expérimentale des instabilités induites par évaporation de solvant dans une solution polymere. *Résumés des exposés de la 9e Rencontre du Non-Linéaire Paris 2006*, page 39, 2006. (Cité page 35.)

[23] K. Eckert, M.L Bestehorn, et A. ; Thess. Square cells in surface-tension-driven Bénard convection : experiment and theory. *Journal of Fluid Mechanics*, 356 :155–197, 2 1998. (Cité page 60.)

[24] L.P. Filippov. Liquid thermal conductivity research at Moscow University. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 11(2) :331 – 345, 1968. (Cité pages 21 et 110.)

[25] T. Gambaryan-Roisman. Marangoni convection, evaporation and interface deformation in liquid films on heated substrates with non-uniform thermal conductivity. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 53(1-3) :390 – 402, 2010. (Cité pages 8 et 9.)

[26] T. Gambaryan-Roisman. Marangoni-induced deformation of evaporating liquid films on composite substrates. *Journal of Engineering Mathematics*, 73(1) :39–52, 2012. (Cité page 8.)

[27] Y. Gorand. *Séchage de solutions polymères : diffusion mutuelle, instabilités et plissement*. PhD thesis, Université Paris Sud - Paris XI, 2003. (Cité page 35.)

[28] Y Gorand, F Doumenc, B Guerrier, et C Allain. Instabilités de plissement lors du séchage de films polymères plans. *Rhéologie*, 3 :22–29, 2003. (Cité pages 8, 35 et 71.)

[29] B. Guerrier, C. Bouchard, C. Allain, et C. Bénard. Drying kinetics of polymer films. *AIChE Journal*, 44(4) :791–798, 1998. (Cité pages 7 et 35.)

[30] W. Hort, S. J. Linz, et M. Lücke. Onset of convection in binary gas mixtures : Role of the dufour effect. *Phys. Rev. A*, 45 :3737–3748, Mar 1992. (Cité pages 15 et 20.)

[31] Aurélie Kalck. Instabilité thermoconvective de Rayleigh-Bénard pour des fluides rhéofluidifiants. Master's thesis, 2012. (Cité page 6.)

[32] K. H. Kang et C. K. Choi. A theoretical analysis of the onset of surface-tension-driven convection in a horizontal liquid layer cooled suddenly from above. *Physics of Fluids*, 9(1) :7–15, 1997. (Cité page 11.)

[33] T. N. Khazanovich. On the theory of thermal diffusion in dilute polymer solutions. *Journal of Polymer Science Part C : Polymer Symposia*, 16(4) :2463–2468, 1967. (Cité page 10.)

[34] R. Klein. *Concrete and Abstract Voronoi Diagrams (Lecture Notes in Computer Science)*. Springer, 1989. (Cité pages x et 61.)

[35] L. D. Landau et E. M. Lifshitz. *Fluid Mechanics, Second Edition : Volume 6 (Course of Theoretical Physics)*. Course of theoretical physics / by L. D. Landau and E. M. Lifshitz, Vol. 6. Butterworth-Heinemann, 2 édition, Janvier 1987. (Cité page 20.)

[36] *hypre Reference Manual*. Lawrence Livermore National Laboratory, 2008. (Cité page 31.)

[37] H. Machrafi, A. Rednikov, P. Colinet, et P. C. Dauby. Time-dependent Marangoni-Bénard instability of an evaporating binary-liquid layer including gas transients. *Physics of Fluids (1994-present)*, 25(8) :–, 2013. (Cité page 11.)

[38] H. Mancini et D. Maza. Pattern formation without heating in an evaporative convection experiment. *EPL (Europhysics Letters)*, 66(6) :812, 2004. (Cité pages 1 et 7.)

[39] I. Mutabazi, J. E. Wesfreid, et E. Guyon. *Dynamics of Spatio-Temporal Cellular Structures : Henri Bénard Centenary Review (Springer Tracts in Modern Physics)*. Springer, 2005. (Cité pages ix et 6.)

[40] J. R. A. Pearson. On convection cells induced by surface tension. *Journal of Fluid Mechanics*, 4 : 489–500, 9 1958. (Cité pages 1, 6 et 35.)

[41] C. Perfetti et C. S. Iorio. Evaporation induced thermal patterns in fluid layers : A numerical study. *Journal of Electronics Cooling and Thermal Control*, 4(4), 2014. (Cité page 7.)

[42] J. Rauch et W. Köhler. Collective and thermal diffusion in dilute, semidilute, and concentrated solutions of Polystyrene in Toluene. *The Journal of Chemical Physics*, 119(22) :11977–11988, 2003. (Cité page 10.)

[43] Michael F. Schatz, Stephen J. VanHook, William D. McCormick, J. B. Swift, et Harry L. Swinney. Onset of surface-tension-driven Bénard convection. *Phys. Rev. Lett.*, 75 :1938–1941, Sep 1995. (Cité page 1.)

[44] S. Semenov et M. Schimpf. Thermophoresis of dissolved molecules and polymers : Consideration of the temperature-induced macroscopic pressure gradient. *Phys. Rev. E*, 69 :011201, Jan 2004. (Cité page 10.)

[45] S. K. Serpetsi et S. G. Yiantsios. Stability characteristics of solutocapillary Marangoni motion in evaporating thin films. *Physics of Fluids (1994-present)*, 24(12) :–, 2012. (Cité page 9.)

[46] B.M. Smolsky et G.T. Sergeyev. Heat and mass transfer with liquid evaporation. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 5(10) :1011 – 1021, 1962. (Cité page 110.)

[47] Srinivasan et Saghir. *Thermodiffusion in Multicomponent Mixtures : Thermodynamic, Algebraic, and Neuro-Computing Models*. Springer, 2012. (Cité page 10.)

[48] Z.F. Sun. Onset of Rayleigh-Bénard-Marangoni convection with time-dependent nonlinear concentration profiles. *Chemical Engineering Science*, 68(1) :579 – 594, 2012. (Cité page 11.)

[49] Jean Taine, Franck Enguehard, et Estelle Iacona. *Transferts thermiques - 5e édition - Introduction aux transferts d'énergie*. 2014. (Cité page 6.)

[50] A. S. Teja. Simple method for the calculation of heat capacities of liquid mixtures. *Journal of Chemical & Engineering Data*, 28(1) :83–85, 1983. (Cité pages 21 et 110.)

[51] O. Touazi, E. Chénier, F. Doumenc, et B. Guerrier. Simulation of transient Rayleigh-Bénard-Marangoni convection induced by evaporation. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 53 (4) :656 – 664, 2010. (Cité pages xi, xv, 1, 11, 20, 28, 36, 57, 65, 67, 68, 69, 107 et 108.)

[52] O. Touazi, E. Chénier, et R. Eymard. Simulation of natural convection with the collocated clustered finite volume scheme. *Computers & Fluids*, 37 :1138–1147, 2008. (Cité page 68.)

[53] G. Toussaint, H. Bodiguel, F. Doumenc, B. Guerrier, et C. Allain. Experimental characterization of buoyancy- and surface tension-driven convection during the drying of a polymer solution. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 51(17-18) :4228 – 4237, 2008. (Cité pages ix, xi, xv, 1, 6, 7, 20, 29, 35, 69 et 71.)

[54] Abdelkrim Trabelsi, Maxime Doya, Emmanuel Bozonnet, Patrick Salagnac, Rafik Belarbi, et Rémi Perrin. Caractérisation expérimentale de propriétés radiatives de revêtements en toiture : Application à un bâtiment industriel. Dans *Conférence Société Française de Thermique*, 2011. (Cité page 5.)

[55] E. Tric, G. Labrosse, et M. Betrouni. A first incursion into the 3d structure of natural convection of air in a differentially heated cubic cavity, from accurate numerical solutions. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 43(21) :4043 – 4056, 2000. (Cité page 34.)

[56] B. Trouette. *Instabilités de Rayleigh-Bénard-Marangoni, induites par évaporation, en régime transitoire. Applications aux solutions polymères*. These, Université Paris Sud - Paris XI, Décembre 2010. (Cité pages 1, 11, 107 et 108.)

[57] B. Trouette, E. Chénier, C. Delcarte, et B. Guerrier. Numerical study of convection induced by evaporation in cylindrical geometry. *The European Physical Journal Special Topics*, 192(1) :83–93, 2011. (Cité pages xi, xv, 37, 57, 67, 68, 69, 107 et 108.)

[58] B. Trouette, E. Chenier, F. Doumenc, C. Delcarte, et B. Guerrier. Transient Rayleigh-Bénard-Marangoni solutal convection. *Physics of Fluids*, 24(7) :074108, 2012. (Cité pages xi, xv, 20, 36, 71, 77, 78 et 109.)

[59] K. E. Uguz. *Evaporative instability in binary mixtures*. PhD thesis, Université Paris Sud Orsay (Paris XI) - University of Florida, Septembre 2012. (Cité page 7.)

[60] G. Vériot et M. Firon. Les cellules photovoltaïques organiques : vers le tout polymère. *Clefs CEA*, (50/51) :122–125, Hiver 2004-2005. (Cité pages ix et 5.)

[61] J. E. Welch, F. H. Harlow, J. P. Shannon, et B. J. Daly. *The Mac method : a computing technique for solving viscous, incompressible, transient fluid-flow problems involving free surfaces*. Los Alamos Scientific Laboratory of the University of California, 1966. (Cité page 31.)

[62] S. G. Yiantsios, S. K. Serpetsi, F. Doumenc, et B. Guerrier. Surface deformation and film corrugation during drying of polymer solutions induced by Marangoni phenomena. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 89(0) :1083 – 1094, 2015. (Cité page 9.)

Liste des symboles

Nomenclature :

A	Allongement géométrique
a_s	Activité du solvant
c_p	Capacité thermique massique à pression constante
D	Coefficient de diffusivité massique
D^T	Coefficient de thermodiffusion
e	Épaisseur solution
$\vec{g}$	Force de gravité
h	Coefficient d'échange convectif
h_i	Enthalpie partielle de l'espèce i
$\vec{j}$	Vecteur flux massique
k	Coefficient de conductivité thermique
L	Coefficient de chaleur latente d'évaporation
N	Nombre de cellules/rouleaux
P	Pression
$\vec{q}$	Vecteur flux thermique
r	Amplitude perturbation aléatoire
t	Temps
T	Température
T_0	Température initiale
ΔT	Écart de température
$\vec{v}$	Vecteur vitesse

Symboles grecs :

α	Diffusivité thermique
β	Coefficient d'expansion
γ	Tension de surface
λ	Longueur d'onde
μ	Viscosité dynamique
ω	Fraction massique
Φ_s	Flux d'évaporation
φ	Fraction volumique
ρ	Masse volumique
$\overline{\overline{\sigma}}$	Tenseur des contraintes
$\overline{\overline{\tau}}$	Tenseur des contraintes visqueuses
θ	Écart réduit de temperature
ξ	Déflexion locale

Indices et exposants :

a	Air
$Cond$	Conduction
c	Convectif
d	Diffusif
$Diff$	Diffusion
Duf	Dufour
$evap$	Évaporation
g	Gazeux
inf	Inférieur
$init$	Initial
int	Interface
l	Liquide
lat	Latéral
m	Moyenne
p	Polymère
s	Solvant
sol	Massique
sl	Surface libre
th	Thermique
vs	Vapeur saturante
x	Direction longitudinale
y	Direction verticale
z	Direction transversale

Paramètres adimensionnels :

Bi	Nombre de Biot
Bo	Nombre de Bond
Cr	Nombre de crispation
Ec	Nombre d'Eckert
Le	Nombre de Lewis
Ma	Nombre de Marangoni
Pe	Nombre de Péclet
Pr	Nombre de Prandtl
Ra	Nombre de Rayleigh
Sc	Nombre de Schmidt

Ce travail de recherche a été réalisé dans le laboratoire "Modélisation et Simulation Multi-échelle" (MSME CNRS UMR 8202) de l'Université Paris-Est Marne-La-Vallée, dont le responsable est S. Naili, au sein de l'équipe "Transfert de chaleur et de Matière (TCM)" dirigée par E. Chénier.
L'encadrement de cette thèse a été assuré par E. Chénier, Maitre de conférence à l'Université Paris Est Marne La Vallée dans le cadre de l'École doctorale 531 "Sciences, Ingénierie et Environnement" dirigée par D. Duhamel.

Titre Modélisation et simulation numérique des transferts de masse et de chaleur induits par évaporation

Résumé L'évaporation d'une solution solvant/soluté est un processus transitoire qui prend fin lorsque le solvant a totalement disparu. Le refroidissement créé par le changement de phase provoque des gradients à la fois thermiques et de concentration en solvant. Ces homogénéités diffusent ensuite dans l'épaisseur de la solution et sont susceptibles d'engendrer un écoulement fluide. L'origine de cette convection peut être liée à des variations de tension de surface ou de densité. Des travaux expérimentaux ont montré que l'épaisseur des dépôts issus de séchages de solutions solvant/soluté semblait pouvoir être corrélée avec les cellules de convection de la zone fluide. Une compréhension approfondie des phénomènes à l'origine de la convection devrait donc participer à un meilleur contrôle de la qualité des dépôts. Sur la base de travaux numériques et expérimentaux publiés, nous avons étudié l'apparition de la convection pour trois types de modèles représentant le processus d'évaporation d'une solution de Polyisobutylène-Toluène : un modèle purement thermique qui s'applique pour les temps courts, un modèle solutal qui est valable sur les temps longs et enfin un modèle couplé thermique/solutal qui représente les transferts sur l'ensemble de la gamme des temps étudiés. Le caractère transitoire de l'évaporation induit une difficulté pour caractériser la naissance de la convection à partir d'un régime de conduction. En effet, cette convection apparaît à partir d'un germe qui est une petite perturbation de la solution diffusive. Si l'amplitude de cette perturbation est trop faible, son amplification à des intensités suffisantes ne pourra pas avoir lieu avant la fin du régime transitoire et l'écoulement ne deviendra donc jamais convectif. Le rôle de la perturbation est donc primordial. Dans des travaux numériques antérieurs, cette perturbation a été imposée à l'état initial, généralement avec une distribution aléatoire du champ thermique ou de vitesse. Lors de cette thèse, nous avons opté pour un modèle plus physique, basé sur l'introduction d'un transfert thermique sur les parois latérales qui joue le rôle de perturbateur de l'écoulement diffusif transitoire. Dans cette thèse, nous avons établi par voie numérique les seuils de transition entre une solution diffusive et un écoulement convectif pour les modèles thermique, solutal et couplé, dans le cas d'une approximation bidimensionnelle du film liquide et des simulations pleinement tridimensionnelles. Des diagrammes espace-temps et l'étude des cellules à la surface libre par des reconstructions de Voronoï nous ont permis de mieux comprendre la naissance et la propagation des instabilités dans la solution fluide.

Mots-clés Interface gaz/liquide, évaporation, convection de Rayleigh-Bénard-Marangoni, couplage thermique et massique, naissance de la convection

Title Modelling and numerical simulation of heat and mass transfer during evaporation

Abstract The evaporation of a solvent/solute solution is a transient phenomenon which ends when the whole solvent has disappeared. Phase change generates a cooling of the liquid-gas interface, and consequently, it creates thermal and solutal gradients. These homogeneities spread in the core solution and produce, eventually, a fluid flow. This convection can be due to the surface tension and/or buoyancy variations. Experimental works have shown that some coating thicknesses stemming from drying processes are correlated to the size of the convection cells in the fluid region. A thorough understanding of the physical phenomena responsible to fluid convection should contribute to improve the control of deposit quality. Based on numerical and experimental works, we have studied the onset of convection for three kinds of models for the drying process of a Polyisobutylene-Toluène solution : A pure thermal model which is valid for short times, a solutal model devoted to the simulation of long times, only, and a thermal/solutal coupled model which takes into account the heat and mass transfer over a long time period of the evaporation process. The transient nature of the evaporation

problem raises the issue of how to define the onset of the convective flow from a diffusive solution. Indeed, this flow motion occurs from a seed which is a small perturbation of the transient diffusive solution. If the perturbation is too weak, the necessary time interval for a significant growing of its magnitude will be greater than the time scale of the transient regime : thus the solution will never be considered as convective. Consequently, the influence of the perturbation is fundamental. In previous numerical works, this perturbation was imposed at the initial state, often through a random spatial distribution applied to the velocity or temperature field. In the present contribution, we have adopted a physical model where the adiabatic lateral walls have been replaced by diathermal walls : The local thermal inhomogeneities create a very weak flow acting as a small disturbance for the transient diffusive solution. In this thesis, we have developed a numerical model to evaluate the thresholds between the diffusive solutions and the convective flows, for the thermal, solutal and thermal/solutal coupled models, for two- and three-dimensional approximations of the Polyisobutylene-Toluène liquid film. Space-time diagrams and convective cell reconstructions at the liquid-gas interface by a Voronoï algorithm allowed us to get a better understanding of the way the disturbances propagate from the lateral walls for finally giving rise to a convective flow in the core fluid.

Keywords Gas/liquid interface, evaporation, Rayleigh-Bénard-Marangoni convection, thermal/solutal coupling, convection onset