

Effets de la mouillabilité sur l'ébullition nucléée.

Hai Trieu PHAN^{1,2*}, Nadia CANEY², Philippe MARTY², Stéphane COLASSON¹, Jérôme GAVILLET³

¹LITEN/GRETh, CEA Grenoble, 17 rue des Martyrs, 38054 Grenoble Cedex 9

²LEGI, BP 53, 38041 Grenoble Cedex 9, FRANCE

³LITEN/LTS, CEA Grenoble, 17 rue des Martyrs, 38054 Grenoble Cedex 9

*(auteur correspondant : hai-trieu.phan@cea.fr)

Résumé - Cette étude a pour objectif d'étudier les effets de la mouillabilité sur l'ébullition en vase. L'angle de contact du fluide a été modifié par revêtement de nanoparticules sur des surfaces de test. Nos résultats expérimentaux obtenus ne sont pas en accord avec les modèles classiques. Une nouvelle approche physique de l'influence de la mouillabilité sur l'ébullition en vase a été établie. Dans cette approche, nous introduisons les notions des macro- et micro-angles de contact afin d'expliquer les phénomènes observés.

Nomenclature

D_d	diamètre de détachement des bulles, m	t_a	temps d'attente, s
f_e	fréquence d'émission des bulles, s^{-1}	t_c	temps de croissance, s
F_σ	force de tension de surface, N		
$F_{\sigma,h}$	composante horizontale de F_σ , N		
$F_{\sigma,v}$	composante verticale de F_σ , N		
h	coefficient de transfert de chaleur, W/m^2K		
LTC	ligne triple de contact		
N_{sa}	nombre de sites de nucléation actifs		
			<i>Symboles grecs</i>
		θ	angle de contact, °
		θ°	θ mesuré dans de l'air à 25°C , °
		θ^s	θ mesuré à température saturante, °
		θ_μ^s	micro angle de contact, °

1. Introduction

Le processus d'ébullition, se traduisant par un changement de phase liquide-vapeur associé à la formation de bulles, est un mode d'échange de chaleur efficace qui occupe une grande place dans le domaine industriel. Par rapport au transfert thermique monophasique, l'ébullition permet de transférer des densités de flux élevées avec des écarts de température relativement faibles. Depuis la deuxième moitié du 20^e siècle, un grand nombre d'études ont été réalisées dans le but de comprendre ce mode de transfert de chaleur. Un problème très souvent étudié dans le domaine de l'ébullition est la formation hétérogène des bulles à la paroi. Plusieurs chercheurs émettent ainsi l'hypothèse qu'à la base des bulles il existe une zone où les trois phases sont en contact: solide, liquide et vapeur. Cette zone est appelée « ligne triple de contact » (LTC). La mouillabilité de surface, qui est définie à travers l'angle de contact d'une goutte micrométrique du liquide sur la paroi, joue-t-elle un rôle important dans le mécanisme de formation des bulles ? Jusqu'aujourd'hui, cette question n'a pas été entièrement résolue, faute de données expérimentales. Les effets de la mouillabilité sur les paramètres de l'ébullition nucléée sont souvent expliqués en utilisant les modèles classiques [1], [2], [3]. En effet, expérimentalement, il est difficile de faire varier l'angle de contact tout en gardant les autres paramètres constants. Les techniques traditionnelles telles que l'ajout de surfactant dans le liquide [4], le dépôt d'une microcouche de différents matériaux sur la paroi [5], [6], [7], [8], ainsi que l'oxydation du cuivre [9], présentent des risques de modification des propriétés du liquide ou du nombre de microcavités à la paroi. De nos jours, le progrès des nanotechnologies permet de changer la chimie et la topographie d'une surface à l'échelle nanométrique. Comme l'échelle caractéristique du processus d'ébullition est micrométrique,

la nanostructuration de surface permet de modifier la mouillabilité sans changer les autres paramètres. Les techniques utilisées dans notre laboratoire sont, respectivement, MOCVD (Metal-Organic Chemical Vapour Deposition), PECVD (Plasma Enhanced Chemical Vapour Deposition) et NNBD (Nanofluids Nucleate Boiling Deposition). Une expérience d'ébullition en vase sur des parois nanostructurées a été réalisée avec l'objectif d'étudier expérimentalement l'influence de la mouillabilité sur l'ébullition nucléée. Elle apporte une meilleure compréhension concernant les effets de l'angle de contact sur le transfert thermique diphasique.

2. Résultats expérimentaux

Les surfaces de test sont des clinquants inox de 100 mm de longueur, de 5 mm de largeur et de 20 μm d'épaisseur. Elles sont soit à l'état vierge, soit nanostructurées par les méthodes MOCVD, PECVD ou NNBD (Figure 1). **L'expérience est à pression atmosphérique. Il s'agit de l'ébullition en vase avec de l'eau déminéralisée à 85°C.** Plus de détails concernant la conception de cette expérience, ainsi que les processus de structuration sont donnés dans [10].

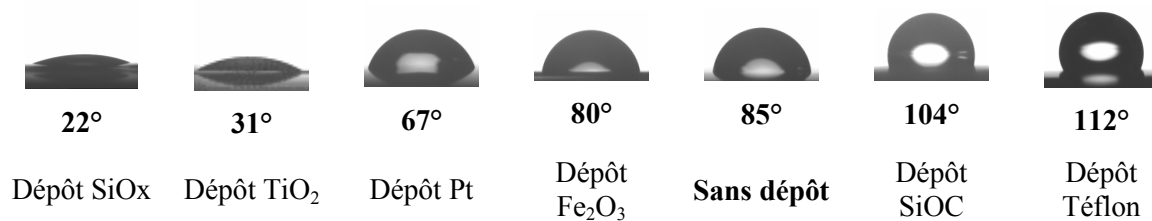


Figure 1 : Angle de contact statique des gouttes d'eau de 2 μL sur la surface de test qui est soit à l'état vierge, soit nanostructurée (*mesures réalisées dans l'air à température ambiante*)

2.1. Surfaces hydrophobes

Pour les surfaces hydrophobes, nous observons que les bulles sont formées à plus faible flux de chaleur que sur des surfaces hydrophiles. Cependant, elles ne peuvent pas se détacher de la paroi. A plus grands flux de chaleur, les bulles grossissent, surtout en largeur, i.e. parallèlement à la paroi. La coalescence des bulles a lieu et peut ainsi entraîner une large couche de vapeur à la paroi. Ces observations sont en accord avec celles de Gaerther [6] et Hummel [7]. Pourtant, aucun détachement de bulles n'est remarqué et le coefficient de transfert thermique n'est pas stable quand les bulles sont présentes à la surface. La température de la paroi augmente avec le temps et après une quinzaine de minutes, la paroi est dégradée de manière locale. Ainsi, il n'est pas possible de mesurer h en régime stationnaire **du fait de l'épaississement permanent d'une couche de vapeur qui isole de plus en plus la paroi du liquide.**

2.2. Surfaces hydrophiles

En analysant les photos prises par camera rapide, nous déterminons le diamètre de détachement (D_d) et la fréquence d'émission des bulles (f_e) pour chaque surface hydrophile. La Figure 2 montre que D_d augmente avec l'amélioration de la mouillabilité. Ce résultat est en désaccord avec la corrélation de Fritz qui estime que les bulles seront plus petites pour un angle de contact plus faible. Par ailleurs, la fréquence d'émission des bulles, qui est définie par $f_e = 1/(t_a + t_c)$, diminue avec l'amélioration de la mouillabilité (Figure 3).

Notre caméra rapide est placée de telle sorte qu'elle fournit une vue en perspective de la génération des bulles. Le nombre de sites de nucléation actifs (N_{sa}) est déterminé sur une zone

de paroi de 23 mm de largeur. Nous remarquons qu'à un instant donné, N_{sa} est plus faible pour les surfaces plus mouillantes en accord avec ce qui a été décrit par Wang et Dhir [2]. Pourtant, si nous comptons N_{sa} sur une longue durée (1s), N_{sa} reste presque indépendant de l'angle de contact (Figure 4). La Figure 5 représente l'évolution de h en fonction de l'angle de contact. Elle montre que h se dégrade avec la diminution de l'angle de contact lorsque celui-ci est compris entre 50 et 90°. Par contre, quand l'angle de contact est inférieur à 50°, sa décroissance induit une augmentation de h . Takata *et al.* [11] ont observé le même phénomène en travaillant sur des surfaces superhydrophiles (angle de contact proche de 0°). Les points de mesures extraits des résultats de ces auteurs sont présentés sur la Figure 5. Ils suivent bien les courbes de tendance de nos mesures. Ainsi, le meilleur coefficient de transfert thermique est obtenu avec une surface ayant un angle de contact de 0° ou de 90°.

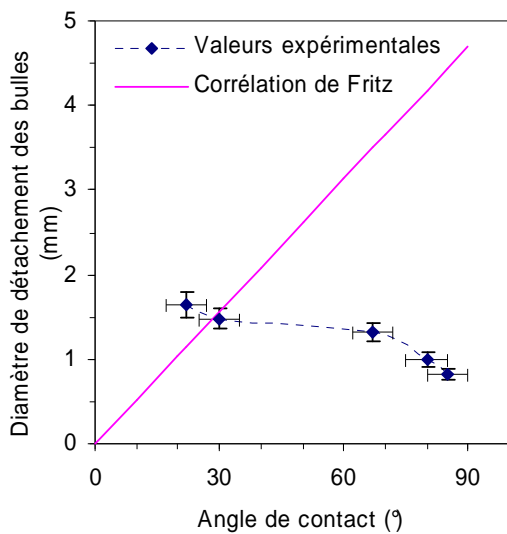


Figure 2 : Variation de D_d avec l'angle de contact statique mesuré dans de l'air à 25°C

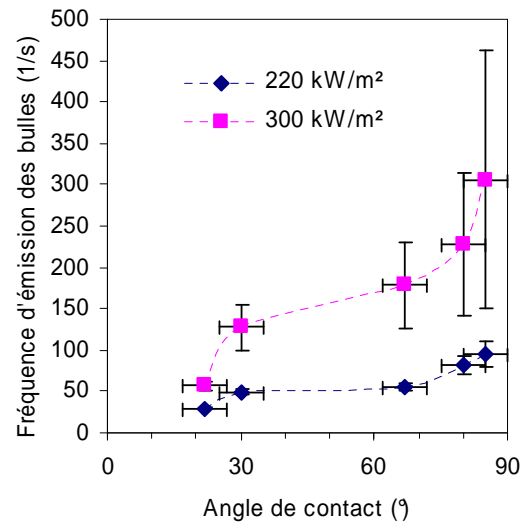


Figure 3 : Variation de f_e avec l'angle de contact statique mesuré dans de l'air à 25°C

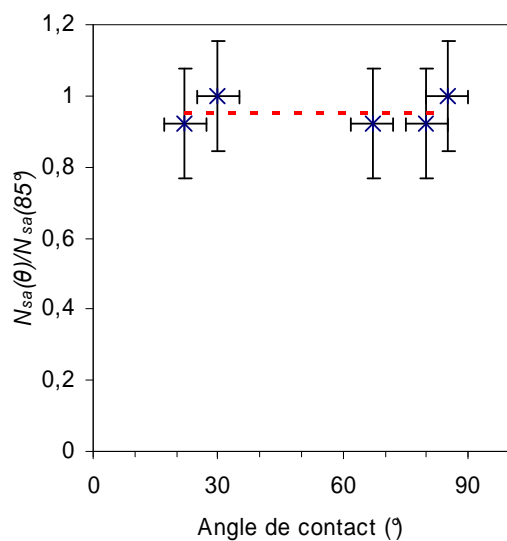


Figure 4 : Rapport de N_{sa} (compté durant 1s) en fonction de l'angle de contact mesuré dans de l'air à 25°C

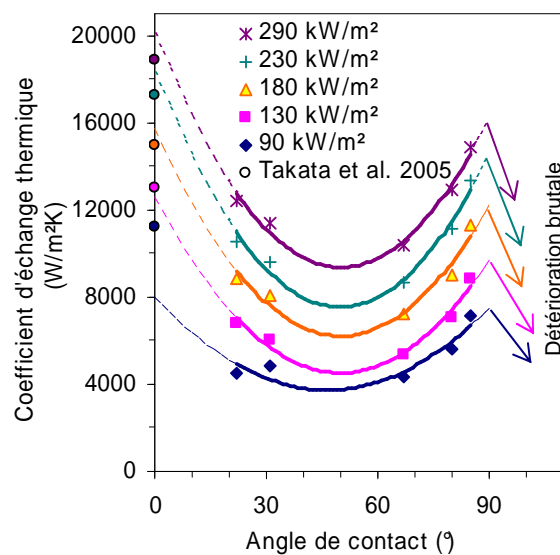


Figure 5 : Variation de h avec l'angle de contact statique mesuré dans de l'air à 25°C

3. Approche physique

3.1. Macro- et micro-angle de contacts

Lors de l'ébullition nucléée, la bulle est formée par l'évaporation du liquide due au transfert thermique de la paroi vers le liquide. L'angle de contact qui s'en suit (θ^s) est différent de celui mesuré à température ambiante (θ°) car, cette fois, le liquide est à température saturante. En général, la tension superficielle du liquide diminuant avec l'augmentation de la température, θ^s est inférieur à θ° pour une température saturante supérieure à l'ambiante. De plus, en ébullition, l'équilibre des énergies de surface devient instable à cause du flux non nul imposé à l'interface solide-liquide. Pour les surfaces hydrophiles, ce flux de chaleur provoque une évaporation forte de la microcouche de liquide en dessous de la bulle. Proche de la LTC, le transfert thermique serait extrêmement grand et pourrait créer un débit d'évaporation qui est beaucoup plus important que dans les zones avoisinantes. La courbure de l'interface liquide-vapeur serait changée [12] et entraînerait l'apparition d'un autre angle de contact que l'on appelle « micro-angle de contact » (θ_μ^s). L'angle θ^s est relatif à une échelle plus importante. Il est ainsi dénommé « macro-angle de contact ».

3.2. Influence du micro-angle de contact

Le micro-angle de contact est un paramètre important de l'ébullition nucléée. D'abord, il influence directement la composante verticale de la force de tension superficielle ($F_{\sigma-v}$), qui maintient la bulle à la paroi. Puis, il crée le mouvement de la LTC (Figure 7) et donc affecte les forces dynamiques. Dans un premier temps, quand la LTC s'élargit de A vers B, la bulle grossit et l'inertie du liquide autour de la bulle exerce une force de réaction permettant de la maintenir à la paroi. Mais dans un deuxième temps, l'avancement du liquide aide la bulle à se détacher. Pendant la croissance de la bulle, le macro-angle de contact varie à cause de l'hystérésis : il diminue lorsque le liquide recule et augmente lorsque celui-ci avance.

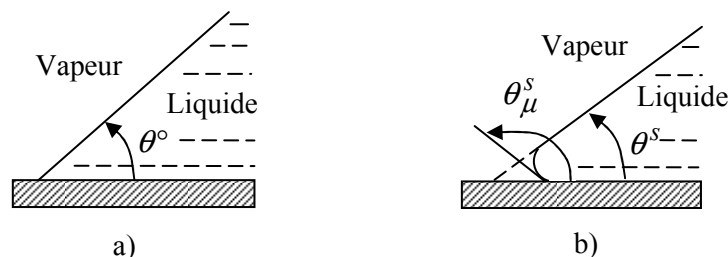


Figure 6 : a) Angle de contact d'une goutte à 25°C; b) Angles de contact de la bulle formée par l'échauffement de la paroi : macro-angle de contact θ^s et micro-angle de contact θ_μ^s

3.3. Influence du macro-angle de contact

Bien que la force de tension superficielle dépende du micro-angle de contact, le macro-angle de contact joue toujours un rôle essentiel. Une façon simple de comprendre les effets du macro-angle de contact est d'analyser son influence sur la forme des bulles. Supposons que le rayon initial de la LTC soit celui du site de nucléation. Pour une simple raison de géométrie, une bulle ayant un macro-angle de contact plus faible sera plus grosse (Figure 8). Ceci explique pourquoi l'initiation de la nucléation nécessite une surchauffe plus importante lorsque la surface est plus mouillante. Par conséquent, entre le détachement d'une bulle et l'a-

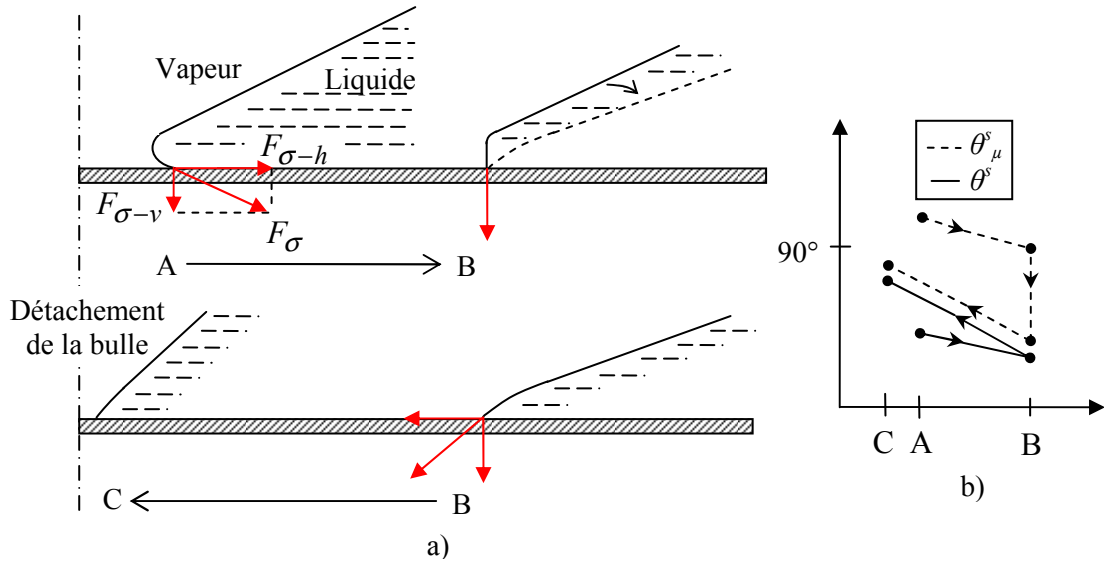


Figure 7: a) L'initiation de la nucléation crée un micro-angle de contact supérieur à 90° , ce qui entraîne le déplacement de la LTC de A vers B. A la position B, la composante horizontale de la force de tension superficielle est nulle mais la minimisation de l'énergie du système et l'inertie du liquide font réduire le micro-angle de contact à la valeur du macro-angle de contact. La LTC recule par l'effet des forces de tension de surface. Son périmètre tend vers 0 pour permettre le détachement de la bulle (point C); b) *Évolution temporelle des macro et micro-angles de contact*

parition de la prochaine, le temps d'attente (t_a) sera plus long pour un plus faible macro-angle de contact. La diminution du macro-angle de contact amplifie donc le déphasage en temps entre les sites de nucléation actifs (deux sites de nucléation sont dits « en phase » s'ils émettent des bulles au même moment). C'est pourquoi, à un instant donné, N_{sa} est plus petit pour les surfaces plus mouillantes, alors que si l'observation est faite sur une longue période, N_{sa} reste quasiment indépendant du macro-angle de contact. Nous pensons que le déphasage en temps entre les sites est un des facteurs principaux de l'amélioration du flux critique par augmentation de la mouillabilité. De plus, comme les bulles sont plus grosses, le temps de croissance des bulles (t_c) augmente avec l'abaissement du macro-angle de contact. L'augmentation de t_a et de t_c induit une diminution de la fréquence d'émission des bulles.

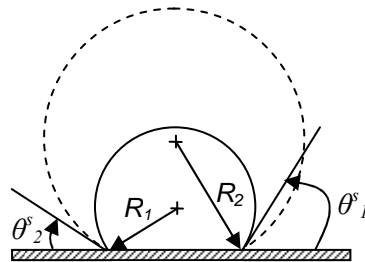


Figure 8 : Soient deux bulles sphériques ayant la même LTC. Si θ_2^s est inférieur à θ_1^s , la bulle ayant l'angle de contact θ_2^s est plus grande que celle ayant l'angle de contact θ_1^s

Par ailleurs, le macro-angle de contact affecte le transfert thermique à travers son influence sur la microcouche de liquide en dessous de la bulle. Pour un macro-angle de contact plus faible, cette zone sera plus large et plus fine, ce qui améliore h . Les résultats représentés sur la Figure 5 pourraient s'expliquer en analysant le compromis entre les effets sur la fréquence d'émission des bulles (f_e) et ceux sur la microcouche de liquide. A 90° , il y a un optimum du

coefficient de transfert thermique car f_e est la plus grande. Entre 50° et 90°, les effets sur f_e dominant et l'abaissement de f_e (à cause de la diminution de l'angle de contact) entraîne la dégradation de h . Cependant, lorsque le macro-angle de contact est inférieur à 50°, les effets sur la microcouche de liquide deviennent dominants. Bien que f_e soit la plus faible, à 0°, les bulles résident plus longtemps sur la paroi avec une plus large et plus fine microcouche, ce qui induit un autre optimum du coefficient d'échange thermique.

4. Conclusion

Nos résultats expérimentaux montrent que la mouillabilité a des effets significatifs sur l'ébullition nucléée. Ils pourraient donc prouver l'existence de la ligne triple de contact à la base de la bulle. Proche de la ligne triple, à cause d'un très fort débit d'évaporation du liquide, la courbure de l'interface liquide-vapeur pourrait être modifiée. Cette modification entraînerait un changement de l'angle de contact. Nous distinguons ainsi les micro-et macro-angles de contact. A cause du micro-angle de contact, la ligne triple s'élargit et se raccourcit durant la croissance d'une bulle. Ceci crée des mouvements du liquide qui sont responsables du phénomène d'hystérésis du macro-angle de contact, ainsi que du détachement des bulles. L'analyse de l'influence du macro-angle sur la forme des bulles permet d'expliquer des observations expérimentales, en particulier celles concernant le coefficient d'échange thermique et le flux critique.

Références

- [1] W. Fritz, Maximum volume of vapor bubbles, *Phys. Z.*, 36 (1935), 379-384.
- [2] C. H. Wang, V. K. Dhir, Effect of surface wettability on active nucleate site density during pool boiling of water on a vertical surface, *Trans ASME J Heat Transfer*, 115 (1993), 670-679.
- [3] S. G. Kandlikar, A theoretical model to predict pool boiling FC incorporating effects of contact angle and orientation, *J. Heat Transfer*, 123 (2001), 1071-1079.
- [4] D.S. Wen, B.X. Wang, Effects of surface wettability on nucleate pool boiling heat transfer for surfactant solutions, *Int. J. Heat and Mass Transfer*, 45 (2002), 1739-1747.
- [5] P. Griffith, J.D. Wallis, The role of surface conditions in nucleate boiling, *Chem. Eng. Prog. Symp. Ser.*, 56 (1960), 49-63.
- [6] R.F. Gaertner, Methods and means for increasing the heat transfer coefficient between a wall and boiling liquid, *U.S. Patent 3,301,314* (1967).
- [7] R. L. Hummel, Means for increasing the heat transfer coefficient between a wall and boiling liquid, *U.S. Patent 3,207,209* (1965).
- [8] R.I. Vachon, G.H. Nix, G.E. Tanger, Evaluation of constants for the Rohsenow pool-boiling correlation, *J. Heat Trans.*, 90 (1968), 239-247.
- [9] S. C. Johnathan, J. Kim, Nanofluid boiling: the effect of surface wettability, *Int. J. Heat and Mass Transfer*, doi:10.1016/j.ijheatfluidflow.2008.07.004 (2008).
- [10] H.T. Phan, N. Caney, P. Marty, S. Colasson, J. Gavillet, A. Maréchal, Surface wettability control by nanocoating: the effects on pool boiling heat transfer and nucleation mechanism, submitted to *Int. J. of Heat and Mass Transfer* (2008).
- [11] Y. Takata, S. Hidaka, J.M. Cao, T. Nakamura, H. Yamamoto, M. Masuda, T. Ito, Effect of surface wettability on boiling and evaporation, *Energy* 30 (2005), 209-220.
- [12] J. Mitrovic, Formation of a liquid jet after detachment of a vapour bubble, *Int. J. of Heat and Mass Transfer*, 40 (1997), 4309-4317.