

Influence de la volatilité lors de l'évaporation instationnaire d'une goutte sessile

Aziz MAATAR¹, Salah CHIKH², Mebrouk AIT SAADA², Lounès TADRIST³

¹ Ecole Militaire Polytechnique, Bordj El Bahri, Alger, Algérie

² USTHB, Faculté de Génie Mécanique & Génie des Procédés, LTPMP, Alger, Algérie

³ Aix Marseille Université, Laboratoire IUSTI, CNRS UMR 7343, Marseille, France

Résumé – Un modèle de diffusion instationnaire est utilisé pour analyser l'influence de la volatilité du liquide et de l'inertie thermique du substrat sur l'évaporation d'une goutte sessile. Une méthode numérique basée sur les volumes finis associée à la méthode ADI est adoptée pour la résolution des équations de diffusion massique et thermique. Trois liquides sont testés : l'eau, l'éthanol et le méthanol sur des substrats en aluminium ou en PTFE. En premier lieu le cas d'un substrat non chauffé est étudié, puis le cas d'un substrat chauffé est considéré pour mettre en évidence l'effet de l'inertie thermique de celui-ci. Les résultats montrent que dans le cas non chauffé, la volatilité a très peu d'influence sur les effets instationnaires et que la nature du substrat ne réduit pas la durée de vie de la goutte. Par contre, sur un substrat chauffé (à 50°C), les effets instationnaires sont sensibles sur presque 50% de la durée de vie d'une goutte d'eau et encore plus (83%) de celle d'une goutte d'éthanol. L'inertie thermique du substrat joue un rôle important quand à la validité de l'hypothèse de quasi-stationnarité.

Nomenclature

C	concentration, Kg/m^3	r, z	coordonnées cylindriques, m
c	chaleur spécifique massique, $\text{J}/\text{kg}\cdot\text{K}$	T	température, $^{\circ}\text{C}$
D	coefficient de diffusion massique, m^2/s		
H_a	humidité relative de l'air		Symboles Grecs
k	conductivité thermique $\text{W}/\text{m}\cdot\text{K}$	α	diffusivité thermique, m^2/s
L_{LG}	chaleur latente d'évaporation, J/kg	ϕ	variable généralisée
\dot{M}	débit d'évaporation, Kg/s	ρ	masse volumique, kg/m^3
R	rayon de contact, m	τ	temps d'évaporation, s

1. Introduction

L'évaporation d'une goutte sessile sur un substrat solide est un phénomène rencontré dans plusieurs applications industrielles pharmaceutiques, électroniques et autres tels que l'enrobage, le revêtement, la fabrication de microlentilles, etc. La physique du phénomène d'évaporation d'une goutte posée sur un substrat solide est assez complexe due au couplage des transferts de chaleur et de masse ainsi que les interactions entre les différentes phases (solide, liquide et gaz), les écoulements des fluides et la dynamique de la ligne de contact.

L'évaporation est régie par le gradient de concentration à la surface de la goutte, mais elle est influencée par plusieurs paramètres tels que les propriétés du liquide (densité, coefficient de diffusion de la phase liquide dans le gaz environnant, la chaleur latente de vaporisation) ainsi que les propriétés du substrat solide et du gaz. L'étude bibliographique montre que plusieurs travaux théoriques [1-4] ont été entrepris pour proposer des modèles mathématiques pour l'évaluation du débit d'évaporation en fonction de l'angle de contact. Les études numériques [5-6] sont aussi nombreuses, mais ils ont, dans la majorité des cas, utilisé un modèle quasi-stationnaire. Ceci reste un bon modèle et donne des résultats appréciables pour certains

liquides et sous certaines conditions d'évaporation. Cependant le modèle quasi-stationnaire n'est pas toujours adéquat notamment lorsque le liquide est très volatil, l'évaporation a lieu sous des conditions de chauffage important et que le substrat a une grande diffusivité thermique. Certains auteurs [7-8] ont analysé l'évaporation d'une goutte en considérant des fluides de différente volatilité par des approches expérimentales.

La présente étude analyse numériquement l'influence des propriétés du substrat et la volatilité du liquide sur la validité de l'hypothèse de quasi-stationnarité très fréquemment utilisée dans les modèles numériques développés dans la littérature.

2. Formulation mathématique

On considère une goutte de $3,64 \text{ mm}^3$ de liquide pur (eau ou éthanol ou méthanol) de petite dimension (inférieure à la longueur capillaire) ayant la forme d'une calotte sphérique. On s'intéresse uniquement aux phénomènes diffusifs ; on néglige par conséquent les mouvements convectifs dans les phases fluides. On étudie l'évaporation en mode accroché. La ligne de contact reste donc immobile. Le problème étudié est considéré axisymétrique. Les équations sont alors écrites en coordonnées cylindriques. Le domaine de calcul est constitué de la goutte (phase liquide), du substrat solide sous forme de disque avec une étendue nettement supérieure à la dimension de la goutte et de l'air environnant (phase gazeuse) avec une humidité relative donnée (40% dans le cas de l'eau et 0% dans le cas de l'éthanol et du méthanol). La figure 1 représente le domaine physique et de calcul.

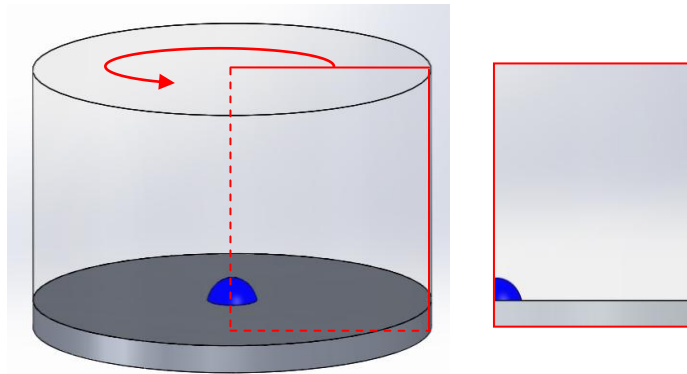


Figure 1 : Domaines physique et de calcul

Le modèle de diffusion instationnaire couplant les transferts thermiques entre les trois phases solide, liquide et gaz est adopté. La diffusion massique est considérée seulement dans la phase gazeuse. Sous les conditions précitées, les équations régissant le problème s'écrivent :

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r k \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(k \frac{\partial T}{\partial z} \right) \quad (1)$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r D \frac{\partial C}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(D \frac{\partial C}{\partial z} \right) \quad (2)$$

Le couplage entre les transferts thermiques et massiques a lieu à l'interface où le bilan énergétique permet d'écrire l'équation suivante :

$$k_L \left. \frac{\partial T}{\partial n} \right|_L - k_G \left. \frac{\partial T}{\partial n} \right|_G = D \frac{\partial C}{\partial n} L_{LG} \quad (3)$$

où L_{LG} est la chaleur latente d'évaporation. La concentration à l'interface est donnée par:

$$C_i = C_{sat}(T_i) \quad (4)$$

Où $C_{sat}(T_i)$ est un polynôme d'ordre 4.

On initialise les températures dans tout le domaine par une température ambiante et les concentrations par la concentration de saturation multipliée par l'humidité relative.

$$\begin{aligned} T_{initiale} &= T_\infty & T_\infty &= 25^\circ\text{C} \\ C_{initiale} &= C_\infty & C_\infty &= C_{sat}(T_{initiale}) \cdot H_a \end{aligned}$$

Les conditions aux limites et aux interfaces associées à ce problème sont indiquées dans ce qui suit :

- à $r = 0$ (axe de symétrie)

$$\frac{\partial T}{\partial r} = 0 \quad \frac{\partial C}{\partial r} = 0$$

- à $r = L$ (frontière extérieure)

$$\begin{aligned} \text{Phase gazeuse} \quad T &= T_\infty \quad C = C_\infty \\ \text{Phase solide} \quad \frac{\partial T}{\partial r} &= 0 \end{aligned}$$

- à $z = 0$ (surface inférieure du substrat)

$$T = T_w$$

- à $z = e$ (surface supérieure du substrat)

$$\text{Interface solide – liquide} \quad T_S = T_L \quad \text{et} \quad k_S \frac{\partial T}{\partial z} \Big|_S = k_L \frac{\partial T}{\partial z} \Big|_L$$

$$\text{Interface solide – gaz} \quad T_S = T_G \quad , \quad k_S \frac{\partial T}{\partial z} \Big|_S = k_G \frac{\partial T}{\partial z} \Big|_G \quad \text{et} \quad \frac{\partial C}{\partial z} \Big|_G = 0$$

- à $z = H$ (surface supérieure du domaine)

$$T = T_\infty \quad C = C_\infty$$

Les équations (1) et (2) avec les conditions aux limites et initiales associées sont résolues numériquement par la méthode des volumes finis.

3. Procédure numérique

Pour résoudre les équations instationnaires de la diffusion, on a adopté la méthode des volumes finis. Pour la discrétisation et la résolution, la méthode ADI (Alternating Direction Implicit) a été utilisée avec l'équation de transport généralisée.

$$\iiint_V \frac{\partial \phi}{\partial t} dt dv = \iiint_V \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \Gamma \frac{\partial \phi}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\Gamma \frac{\partial \phi}{\partial z} \right) \right) dt dv$$

avec $dv = 2\pi r dr dz$. Pour l'équation de diffusion thermique $\Phi = T$ et $\Gamma = \alpha = k/\rho c$ (diffusivité thermique), alors que pour l'équation de diffusion massique $\Phi = C$ et $\Gamma = D$ (diffusivité massique).

Le domaine est discrétisé avec un maillage structuré et zonal pour mieux affiner les régions proches des interfaces et de la goutte. La figure 2 montre la grille sur le domaine de calcul.

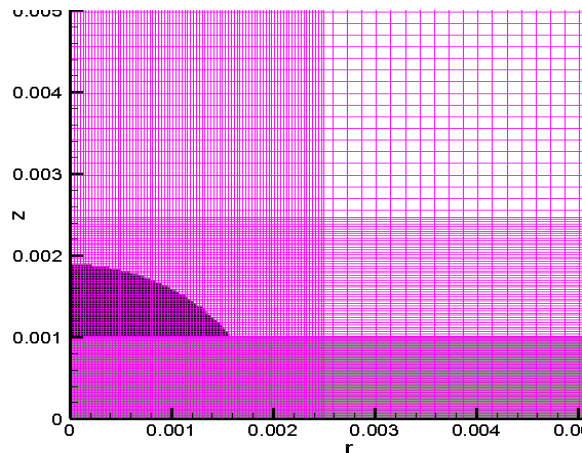


Figure 2: Maillage dans la région proche de la goutte

Le maillage est de 150×150 pour le cas d'un substrat de 1 mm d'épaisseur ou de 250×250 si l'épaisseur est de 4 mm. Le pas spatial dans la goutte et son voisinage est de $R/50$, R étant le rayon de la base de la goutte. Le pas temporel est pris de 4×10^{-5} s. La méthode ADI utilisée ne présente pas de problème de stabilité ; néanmoins un pas de temps assez faible a été pris pour analyser les effets instationnaires. Les résultats obtenus par le code de calcul développé sont, en premier, validés par les résultats des travaux de la littérature.

4. Validation

Un code de calcul est développé en Fortran basé sur la méthode ADI pour la résolution de l'équation de diffusion thermique dans les trois phases solide, liquide et gazeuse et de l'équation de diffusion massique dans l'air. Les champs de concentration et de température sont obtenus respectivement dans l'air et les 3 phases. Les distributions des flux de chaleur aux interfaces et du débit d'évaporation sont déduites. Le programme est validé en comparant les résultats obtenus avec ceux de la littérature dans les mêmes conditions (modèle quasi-stationnaire). La figure 3 montre la comparaison de l'évolution du volume de la goutte au cours du temps avec les résultats expérimentaux de Song et al. [9] et ceux numériques de Ait Saada et al. [5]. Le volume de la goutte est calculé à partir de la loi de Fick intégrée sur la surface de la goutte qui permet d'obtenir le débit d'évaporation qui est égal à la variation de volume. Les résultats numériques obtenus avec les deux codes de calculs sont identiques. La comparaison avec les résultats expérimentaux sont satisfaisants. Les écarts observés en fin d'évaporation sont sans doute liés aux incertitudes de mesures et peut-être aux conditions aux limites qui ne restent pas constantes dans le temps.

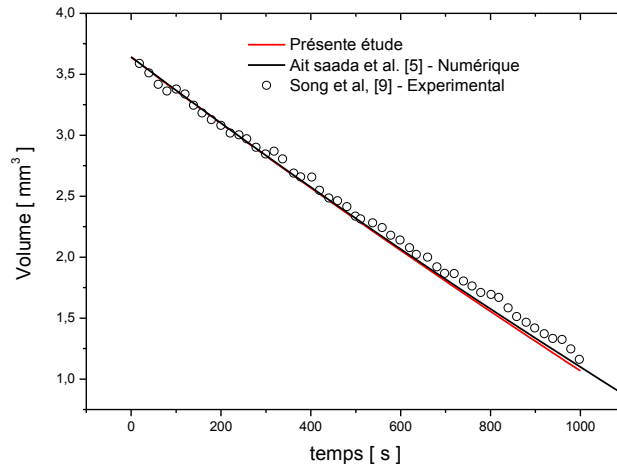


Figure 3: Comparaison du volume de la goutte pour des conditions initiales $V_0 = 3.64 \text{ mm}^3$, $\theta = 57.2^\circ$

5. Résultats et discussion

Pour analyser l'influence de la volatilité du liquide et illustrer les effets instationnaires sur l'évaporation, nous allons présenter les résultats d'une goutte sur un substrat non chauffé et ensuite ceux d'une goutte sur un substrat chauffé. Nous montrerons aussi que l'inertie thermique du substrat peut jouer un rôle important. Pour cela, deux substrats (PTFE et Aluminium) avec des diffusivités thermiques différentes sont considérés (voir Fig.4). L'épaisseur du substrat utilisé est de 4mm pour mieux illustrer l'influence de l'inertie thermique.

L'évolution du débit d'évaporation est similaire pour les six (6) cas présentés, avec une importante diminution suivie par une légère variation du débit d'évaporation. La différence entre ces évolutions se trouve dans le niveau du débit d'évaporation et la durée de la première phase.

On remarque que la volatilité fait augmenter le débit d'évaporation et par la même diminuer le temps d'évaporation. D'autre part, quand la goutte s'évapore le substrat en aluminium se refroidit plus rapidement que le PTFE. Ce qui explique l'écart entre les deux courbes de chaque figure (a,b,c).

Les droites verticales représentent l'instant auquel la forte variation du débit d'évaporation est atténuée et que celui-ci continue de diminuer mais très faiblement. Cet instant est noté par τ ; il est déterminé graphiquement.

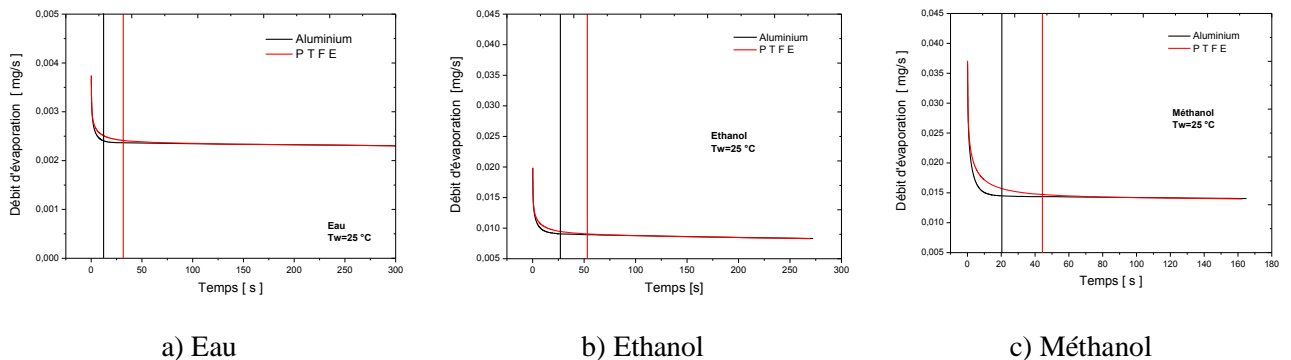


Figure 4: Evolutions du débit d'évaporation en fonction du temps pour les deux substrats (aluminium, PTFE)

Le tableau 1 ci-dessous résume l'analyse de l'influence de la volatilité du liquide sur les quantités évaporées et la durée de vie de la goutte notée par τ_G pour le cas d'un substrat non chauffé. Les pourcentages du volume évaporé à l'instant τ par rapport au volume initial et le rapport τ/τ_G sont donnés dans le tableau 1.

Tableau 1 : Analyse de l'influence de la volatilité sur les quantités évaporées et les temps τ et τ_G pour un cas de substrat non chauffé $T_w=25^\circ\text{C}$

Milieu		τ [s]	τ_G [s]	% du volume évaporé à τ	τ/τ_G (%)
Eau (3,64 mm ³)	sur Al	20	1600	1,78	1,25
	sur PTFE	55	1600	3,85	3,44
Ethanol (3,64 mm ³)	sur Al	25	330	7,97	7,58
	sur PTFE	55	325	12,2	16,9
Méthanol (3,64 mm ³)	sur Al	20	200	11	10
	sur PTFE	45	195	26	23,1

Dans le cas où le substrat est non chauffé et que la température initiale est partout de 25°C , il est évident que la volatilité du liquide réduit la durée de vie de la goutte. Ce qui confirme les résultats de la Fig.4 qui indique différentes intensités du débit d'évaporation. Cependant, il est à noter que le temps τ de la forte diminution du débit d'évaporation est très peu influencé par la volatilité ($\tau=20$ à 25 s pour toutes les gouttes sur Aluminium et $\tau=45$ à 55 s pour toutes les gouttes sur PTFE). Par contre, l'influence du substrat sur les effets instationnaires est assez sensible. Le temps τ est d'environ 2,5 fois plus grand pour une goutte sur PTFE que sur Aluminium, bien que le substrat n'affecte pas la durée de vie de la goutte. Nous pouvons donc dire que, dans le cas d'un substrat non chauffé, la volatilité du liquide réduit la durée de vie de la goutte mais n'a pas d'influence sur les effets instationnaires. Dans ce qui suit, nous présentons le cas d'une goutte sur un substrat chauffé. Initialement tout est à 25°C , puis à l'instant $t=0$, on porte la face inférieure du substrat à la température imposée T_w . Les figures 5a, 5b et Fig.6 montrent bien l'influence de l'inertie thermique du substrat sur le débit d'évaporation. Sur un substrat en PTFE, durant les premières étapes de l'évaporation, le débit diminue comme si le substrat est non chauffé jusqu'à ce que la chaleur arrive à l'interface liquide-gaz. Par contre, pour le substrat en aluminium la chaleur arrive spontanément à l'interface ce qui permet à la goutte d'atteindre l'équilibre thermique rapidement. Quand on chauffe le substrat en PTFE la chaleur diffuse lentement dans le substrat ce qui implique une variation progressive de la température de la goutte ainsi que du débit d'évaporation durant toute la durée de vie de la goutte.

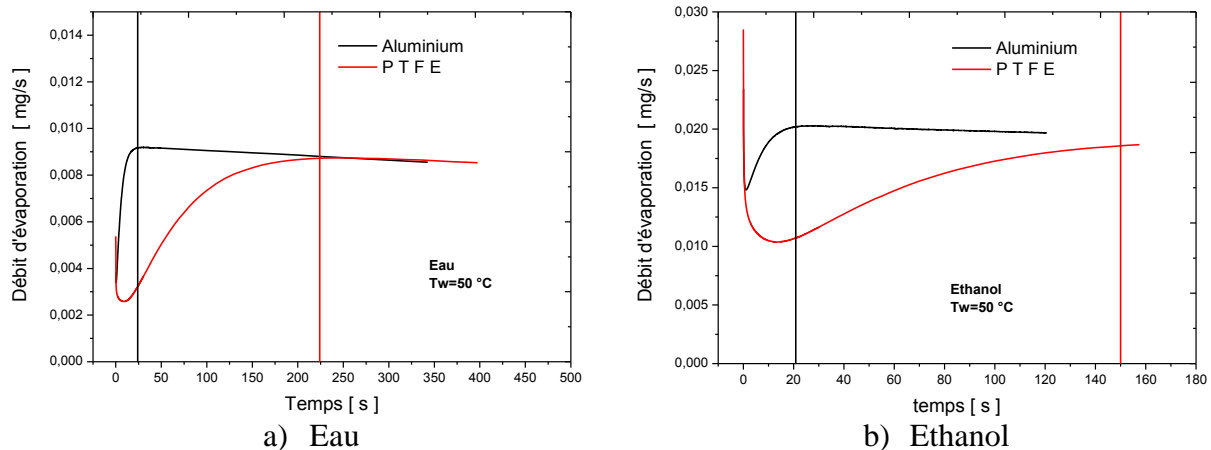


Figure 5: Evolution du débit d'évaporation pour les deux substrats (aluminium, PTFE)

L'inertie thermique du substrat est mise en évidence par le temps auquel la courbe change de sens de variation (décroissante puis croissante). Il est clair que l'inertie thermique du PTFE est nettement supérieure à celle de l'aluminium dans lequel la chaleur diffuse presque instantanément. La température de chauffage joue un rôle important, elle écourte la durée de vie de la goutte en augmentant son débit d'évaporation (voir Fig.5-a et Fig.6).

L'analyse de la quasi-stationnarité est résumée dans le tableau 2. Il montre que l'hypothèse de la quasi-stationnarité dépend fortement de la nature du substrat. Par exemple dans le cas d'une goutte d'eau (peu volatile) sur un substrat en PTFE, la première phase correspond à une variation considérable du débit d'évaporation représentant 48% et 76% du temps d'évaporation pour des températures de chauffage de 50°C et 70°C respectivement. L'éthanol est un liquide volatil mais la première phase représente 14% de la durée de vie sur un substrat en aluminium.

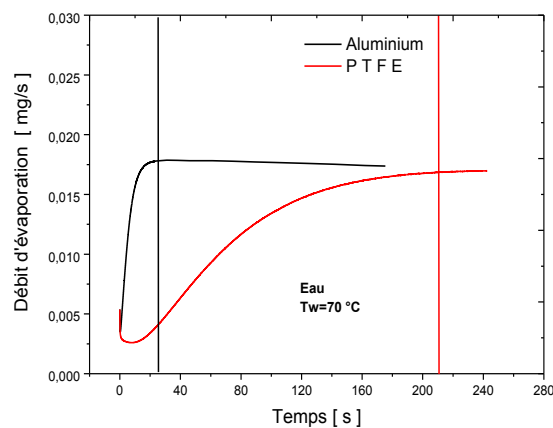


Figure 6: Evolution du débit d'évaporation d'une goutte d'eau pour les deux substrats (aluminium, PTFE) avec $T_w=70^\circ\text{C}$.

Tableau 2 : Analyse de la quasi-stationnarité pour un cas de substrat chauffé

T_w [°C]	Milieu		τ [s]	τ_G [s]	% du volume évaporé à τ	τ / τ_G (%)	Quasi-stationnarité ou Instationnarité
50 °C	Eau (3,64 mm ³)	Sur Al	25	415	6,6	6	QS
		Sur PTFE	225	470	41,8	47,9	Inst
	Ethanol (3,64 mm ³)	Sur Al	20	145	13,5	13,8	QS
		Sur PTFE	150	180	79,4	83,3	Inst
70 °C	Eau (3,64 mm ³)	Sur Al	25	210	11	11,9	QS
		Sur PTFE	210	275	70	76,4	Inst

6. Conclusion

Les résultats ont montré que si le substrat n'est pas chauffé et que l'évaporation a lieu à une température de 25°C, la volatilité réduit considérablement la durée de vie de la goutte, mais elle a peu d'influence sur l'hypothèse de quasi-stationnarité bien que cette hypothèse peut ne pas être valide pour des liquides très volatils. Par exemple, pour une goutte de méthanol sur

un substrat en PTFE, les effets instationnaires peuvent durer jusqu'à 23% de la durée de vie de la goutte. Par contre, si le substrat est chauffé, l'inertie thermique du substrat ainsi que la volatilité du liquide jouent un rôle important. Par exemple, le temps caractéristique du régime transitoire pour une goutte d'éthanol sur un substrat en PTFE chauffé à 50°C ou d'une goutte d'eau sur un substrat en PTFE à 70°C représente respectivement 80% et 70% de la durée de vie de la goutte. Il est noté que l'inertie thermique du substrat a le plus d'influence sur cette hypothèse. Ces travaux seront poursuivis pour analyser plus en détail les effets instationnaires dans les conditions simplifiées considérées ici et en prenant en compte les mouvements convectifs induits par les effets thermosolutal dans la phase gazeuse et thermocapillaire dans la goutte.

Références

- [1] Bourgès-Monnier C. and Shanahan M.E.R (1995) Influence of evaporation on contact angle, *Langmuir Amer.Chem.Society*, Vol.11,pp.2820 – 2829.
- [2] Deegan, R. D., Bakajin, O., Dupont, T. F., Huber, G., Nagel, S. R., Witten, T. A. (2000) Contact line deposits in an evaporating drop, *Phys. Rev. E*, Vol.62, n°1, pp. 756 – 765.
- [3] Hu H. and Larson R. G. (2002), Evaporation of a sessile droplet on a substrate. *J. Phys.Chem. B*, Vol.106, pp. 1334 – 1344.
- [4] Popov Y. O. (2005), Effects of Kinks on DNA Elasticity,,*Phys. Rev. E*, Vol.71, 0366137.
- [5] Ait Saada M., Chikh S., Tadrist L., Numerical investigation of heat and mass transfer of an evaporating sessile drop on a horizontal surface, *Physics of fluids*, 22, (2010) 112115.
- [6] Kelly-Zion P. L., Pursell C. J., Vaidya S., Batra J. (2011), Evaporation of sessile drops under combined diffusion and natural convection, *Colloids Surf. A*, 381, 31.
- [7] Starova V., Sefiane K. (2008), On evaporation rate and interfacial temperature of volatile sessile drops, *J. Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects*, Vol.333, pp. 170 – 174.
- [8] Bin L., Bennacer R., Bouvet A. (2011), Evaporation of methanol droplet on the Teflon surface under different air velocities, *Applied Thermal Engineering*, Vol.31, pp. 3792 – 3798.
- [9] Song H., Lee Y., Jin S., Kim H. Y., Yoo J. Y., (2011), Prediction of sessile drop evaporation considering surface wettability, *Microelectronic Engineering* 88, 3249–32.