

Mise en évidence expérimentale de la contribution du transport convectif lors de l'évaporation de gouttelettes sessiles.

Florian CARLE^{1*}, Benjamin SOBAC^{1,2}, David BRUTIN^{1*}

¹Laboratoire IUSTI, UMR 7343 CNRS, Aix-Marseille Université, 5 rue Enrico Fermi, 13453 Marseille cedex 13, France

² Université Libre de Bruxelles, TIPs (Transfers, Interfaces and Processes), 1050 Brussels, Belgique
*(auteurs correspondants : florian.carle@polytech.univ-mrs.fr, david.brutin@univ-amu.fr)

Résumé – Nous étudions dans cet article la contribution du transport convectif dans la phase vapeur sur le débit d'évaporation d'une gouttelette sessile. En comparant les données expérimentales avec le modèle d'évaporation quasi-statique contrôlé par diffusion, la déviation importante avec la température du substrat a été récemment attribuée à la convection naturelle dans la phase vapeur. Pour valider cette analyse, nous présentons des résultats expérimentaux obtenus sous deux niveaux de gravité : $1g$ et μg . La contribution de la convection naturelle est analysée à l'aide du nombre de Grashof et un modèle empirique est développé, combinant le transport diffusif et convectif.

Nomenclature

dm/dt	débit d'évaporation ($\text{kg}\cdot\text{s}^{-1}$)		thermique ($^{\circ}\text{C}^{-1}$)
E^*	débit d'évaporation normalisé (-)	ρ	densité ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$)
g	accélération gravitationnelle ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$)	ν	viscosité cinématique ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$)
$1g$	gravité terrestre ($9.81 \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$)	<i>Indices et exposants</i>	
μg	gravité réduite ($0.49 \text{ m}^2\cdot\text{s}^{-1}$)	a	air
L_V	chaleur latente de vaporisation ($\text{J}\cdot\text{kg}^{-1}$)	A	ambient
M	masse molaire ($\text{kg}\cdot\text{mol}^{-1}$)	C	convectif
P	pression (Pa)	i	initial
Q	flux de chaleur absorbé ($\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$)	S	substrat
\bar{R}	constante des gaz parfaits ($\text{m}^2\cdot\text{kg}\cdot\text{s}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}\cdot\text{mol}^{-1}$)	sol	solutal
S	surface de mouillage (m^2)	exp	expérimental
T	température ($^{\circ}\text{C}$)	th	thermique
		v	vapeur
<i>Lettres grecques</i>			
β	coefficient de dilatation		

1. Introduction

Le phénomène fondamental de l'évaporation des gouttelettes sessiles, malgré le grand nombre d'études et de publications qui lui sont consacrés depuis près d'un demi-siècle, est encore un domaine qui attire un grand intérêt en raison de sa large applicabilité et sa complexité. Le séchage de gouttelettes est influencé par plusieurs facteurs : ceux inhérents à la composition du fluide (liquides purs [1, 2], solutions de particules [3–5] ou de polymères [6]), ceux qui sont inhérentes au support (propriétés du substrat : rugosité et mouillage [7–10], propriétés thermiques [11–14]) et ceux en fonction des conditions environnementales (substrat non chauffé [1–3] ou chauffé [14–16], débit d'air [17] ou encore humidité [18]). Avoir une meilleure compréhension de l'évaporation est d'un intérêt capital pour avoir plus de contrôle sur les différentes applications, par exemple les technologies d'impression et de revêtement, le refroidissement par pulvérisation, les dosages biochimiques, le dépôt d'ADN/ARN ou encore la fabrication de nouveaux matériaux optiques et électroniques...

La plupart des recherches réalisées dans la dernière décennie traitaient la cinétique d'évaporation et ont abouti à des modèles de prévision du débit d'évaporation des gouttelettes sessiles. La description classique considère l'évaporation comme un processus quasi-stationnaire contrôlé par la diffusion de la vapeur dans l'air et tout le système est supposé être isotherme à la température ambiante [2, 3, 19]. Ce modèle décrit bien les résultats expérimentaux quelle que soit la mouillabilité et le volume de gouttelettes sphériques s'évaporant à température ambiante [9, 10]. Toutefois, la capacité descriptive de ce modèle commence à être remise en question dès que les effets thermiques liés à l'évaporation ne sont plus négligeables, c'est à dire lorsque le substrat est un isolant thermique [11, 13, 14] (le substrat ne peut fournir une énergie constante et est refroidi par la goutte) ou lorsque la température du substrat augmente [14, 16]. En effet, dans ce cas, le modèle isotherme diffusif sous-estime le débit d'évaporation et un écart entre les expériences et le modèle se développe et augmente avec la température du substrat comme indiqué dans la figure 1 (haut).

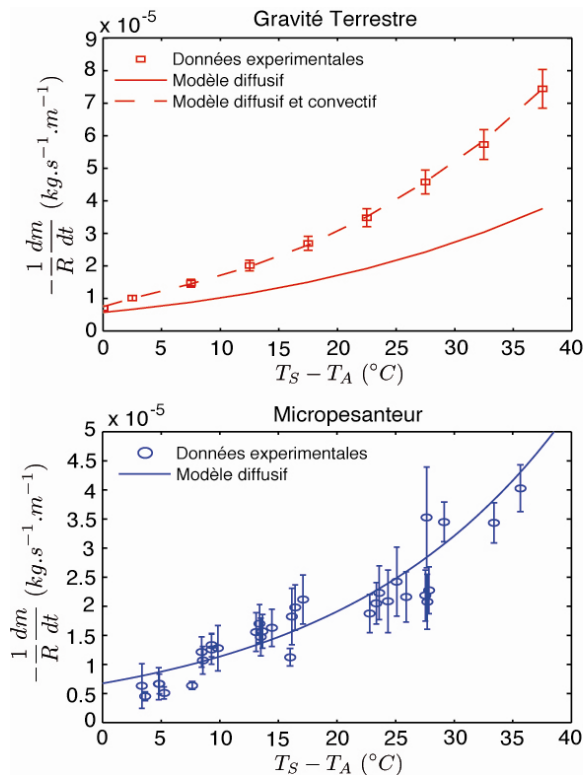


Figure 1 : Taux d'évaporation adimensionné par le rayon d'une gouttelette d'éthanol sessile en fonction de la différence de température entre le substrat et l'air ambiant pour 1g (en haut) et pour μg (en bas). Information sur les fits en lois de puissance : $-\frac{1}{R} \frac{dm}{dt}_{\text{exp}} = a(T_S - T_A)^b$ avec $a = 1,36.10^{-9} \text{ kg.s}^{-1}.\text{m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, $b = 2,62$ (1g) and $a = 8,75.10^{-9} \text{ kg.s}^{-1}.\text{m}^{-1}.\text{K}^{-1}$, $b = 2.061$ (μg)

Dans cet article, nous avons expérimentalement mis en évidence, grâce à des expériences effectuées à deux niveaux de gravité, que le modèle isotherme diffusif décrit correctement l'évaporation en l'absence de gravité et permet de valider les hypothèses inhérentes à ce modèle. L'écart qui se développe avec l'augmentation de la température du substrat en gravité terrestre est donc uniquement du à l'effet du transport par convection naturelle dans la phase vapeur, ce qui augmente considérablement le taux d'évaporation. La contribution des effets thermiques ou solutaux sur la convection est analysée et le modèle purement diffusif est empiriquement étendu à un modèle plus global, en tenant compte du transport par diffusion et convection dans la phase gazeuse.

2. Descriptions des expériences

Deux séries d'expériences ont été menées avec des configurations similaires en gravité terrestre (1g) au sol et en gravité réduite (μg) en vols paraboliques. Les vols paraboliques permettent de créer 22 secondes de gravité à $10^{-2} g$ encadrées par deux phases de 20 secondes d'hyper-gravité (1,8 g). On évapore une gouttelette d'éthanol sur un substrat en aluminium cylindrique chauffé (10 mm x 10 mm) recouvert d'une couche de Nuflon, à l'intérieur d'une cellule qui est suffisamment grande pour assurer une concentration constante de vapeur loin de la gouttelette et au-dessous de la saturation pour empêcher de potentielles perturbations externes. Le substrat est instrumenté d'un fluxmètre qui permet la détermination du débit d'évaporation ($-dm/dt = QS/L_V$). Une caméra haute définition a été utilisée pour visualiser latéralement les gouttelettes et mesurer les paramètres géométriques, *i.e.* rayon de la base R , hauteur h et angle de contact θ . Le rayon de base rencontré étant toujours inférieur à la longueur capillaire ($L_C = 1,69$ mm en $1g$ et $L_C = 7,46$ mm en μg), les gouttelettes ont une forme de calotte sphérique.

Les gouttelettes s'évaporent dans une situation mouillante ($\theta_i = 30^\circ$ en $1g$ et $\theta_i = 23^\circ$ en μg), et la ligne de contact est accrochée au substrat pendant toute la durée de l'évaporation en raison de l'importance relative de la rugosité de surface ($r_{RMS} = 1,75 \mu m$). Plus d'informations sur le dispositif expérimental peut être trouvée dans la référence [20].

La figure 1 présente le débit d'évaporation global en fonction de la température du substrat pour les deux niveaux de gravité. Les expériences révèlent que, quel que soit le niveau de gravité, le débit d'évaporation augmente avec la température du substrat suivant une loi de puissance. Ces données expérimentales sont comparées au modèle d'évaporation quasi-stationnaire contrôlé par diffusion [2, 19] (ligne continue) définie par l'équation (1) :

$$\frac{-dm}{dt} = \pi R D \Delta c_V f(\theta) \quad (1)$$

où D est le coefficient de diffusion de la vapeur dans l'air [21] (pour l'éthanol s'évaporant dans l'air à $25^\circ C$, sa valeur est de $1,21 \cdot 10^{-5} m^2 \cdot s^{-1}$ à 1 bar et $1,49 \cdot 10^{-5} m^2 \cdot s^{-1}$ à 0,835 bar). $f(\theta) = 1,3 + 0,27\theta^2$ est une fonction qui dépend de l'angle de contact [2] (valable dans la limite des petits angles de contact, *i.e.* $\theta < 90^\circ$) qui peuvent être estimés à 1,3 dans la limite des angles de contact inférieurs à 40°). $\Delta c_V = c_0 - c_\infty$ est la différence entre la concentration de vapeur à l'interface, qui est supposée être saturée à la température du substrat ($c_0 \approx c_V(T_S)$) et considérée comme nulle loin de la gouttelette à cause de l'importante longueur caractéristique de la cellule par rapport à la longueur caractéristique de gouttelettes ($c_\infty \approx 0$). Ce modèle d'évaporation par diffusion mis en œuvre avec la variation de température estime que la gouttelette est isotherme à la température du substrat. Les expériences peuvent effectivement être considérées comme quasi stationnaires, car le temps de diffusion est plus petit que le temps d'évaporation, $t_D/t_F \approx c_0/\rho \approx 10^{-3} - 10^{-4}$. Il est à noter que les valeurs des débits d'évaporation données par le modèle sont différents pour les deux séries d'expériences en raison de l'ajustement du coefficient de diffusion et de la vapeur saturée à la température et à la pression atmosphérique (1 bar sur Terre et 0,835 bar dans l'avion).

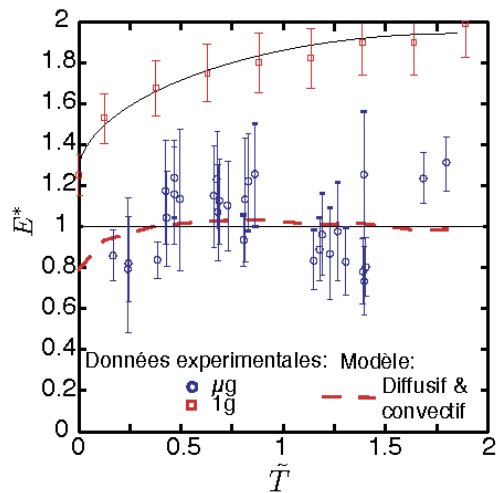


Figure 2 : Débits d'évaporation adimensionné E^* en fonction de la température normalisée $\bar{T} = (T_S - T_A)/T_A$. Les barres d'erreurs sont identiques à celle de la figure 1.

Dans des conditions de gravité réduite, les figures 1 (en bas) et 2 révèlent que le modèle d'évaporation contrôlé par diffusion prédit correctement les données d'expériences, malgré une dispersion importante des données en raison de perturbations causées par le vol de l'avion, et notamment par les fortes vibrations. Ce bon accord souligne, pour la première fois à notre connaissance, que le modèle est valide et peut expliquer les variations de la température du substrat. En l'absence des effets de la gravité, l'évaporation peut alors être considérée à juste titre comme quasi-stationnaire, contrôlée par la diffusion, quelle que soit la température du substrat et la température isotherme de la gouttelette. En effet, le gradient thermique qui se développe à l'intérieur d'une gouttelette qui s'évapore uniquement par diffusion est apparu comme négligeable lorsque la goutte est suffisamment mince et évaporée sur un substrat hautement conducteur de la chaleur [10, 13, 18].

Par conséquent, l'écart constaté en gravité terrestre ne peut être du qu'au développement d'un autre mécanisme qui accompagne l'évaporation sous l'effet de la gravité ; ce mécanisme supplémentaire pour la diffusion augmentant le débit d'évaporation. La contribution de ce mécanisme est plus importante lorsque la température du substrat est plus élevée. Ces observations indiquent clairement que ce mécanisme est la convection naturelle dans la phase vapeur qui se développe en raison de forces de flottabilité. Comme le modèle d'évaporation purement diffusif ne tient pas compte de la convection naturelle, il sous-estime naturellement le débit d'évaporation expérimental. La convection naturelle augmente le transfert de masse en phase vapeur en modifiant le champ de vapeur autour de la gouttelette, créant ainsi un mouvement de flux et de renouvellement du gaz autour de la gouttelette. Ceci conduit donc à un accroissement de la vitesse d'évaporation, l'évaporation étant commandée par la différence entre la concentration de vapeur à l'interface et à l'infini et est généralement contrôlé majoritairement par le transport de masse dans la phase vapeur.

3. Développement du modèle empirique

Considérant que la diffusion et la convection sont importantes dans notre problème dans les conditions de gravité terrestre, le débit d'évaporation peut être considéré comme la somme d'une contribution de diffusion et une contribution convective [22] $E = E_D + E_C$. Le débit d'évaporation adimensionné est alors exprimé par $E^* = 1 + E^*_C$, où E^*_C correspond à la part du débit d'évaporation sans dimension due à la convection. La déviation par rapport à l'unité observée sur la figure 2 montre la contribution de la convection naturelle sur le débit d'évaporation en fonction de la température. Comme la convection est induite par flottabilité, on peut caractériser sa contribution en

fonction du nombre de Grashof Gr qui compare les forces de flottabilité avec les forces de viscosité (voir figure 3). Dans notre cas, la convection naturelle peut avoir deux origines ; le système comprend à la fois un gradient de température et un gradient de concentration de vapeur dans la phase gazeuse, par conséquent, nous avons examiné séparément les deux effets et de leurs contributions à travers le nombre de Grashof solutal, $Gr_{sol} = g\Delta c R^2 / \varphi v_a^2$ et le nombre de Grashof thermique, $Gr_{th} = g\beta\Delta T R^2 / v_a^2$ (où $\beta = (1/\rho)(\partial\rho/\partial T)$).

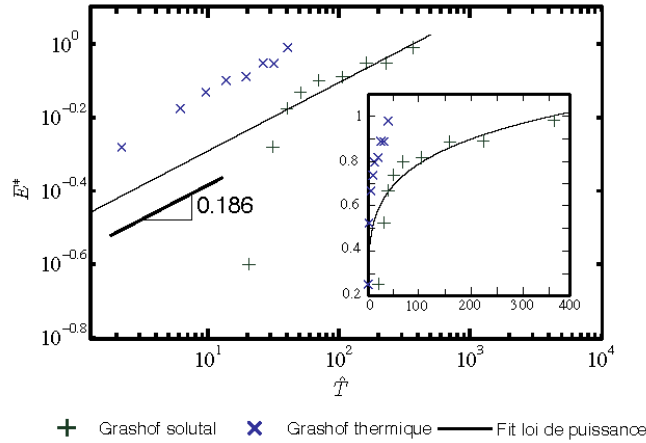


Figure 3 : Variation du terme d'évaporation convective sans dimension E_c^* en fonction du nombre de Grashof sur une échelle log-log. L'encart montre les mêmes données en coordonnées cartésiennes.

Figure 3 permet d'observer la variation du terme d'évaporation convective en fonction du nombre de Grashof. À température ambiante, la convection thermique est nulle en raison de l'absence d'un gradient de température ($Gr_{th} = 0$). Toutefois, une faible convection solutale se développe en raison de la différence de concentration dans la phase vapeur ($Gr_{sol} = 20,5$). Cela peut expliquer le faible écart dans le débit d'évaporation observé entre les expériences et le modèle de diffusion à température ambiante [22]. Dès que le substrat est chauffé, les contributions des convections thermiques et solutales se développent et augmentent avec la température. La contribution de la convection thermique semble être faible par rapport à la convection solutale car le rapport Gr_{th}/Gr_{sol} est inférieur à 10% dans la gamme des températures étudiées. Ainsi, nous avons considéré, en première approximation, que l'effet de la convection thermique sur le débit d'évaporation est négligeable par rapport à l'effet de la convection solutale. Ainsi, dès que le substrat est chauffé, le terme évaporation convective varie en fonction du nombre de Grashof comme $E_c^* = aGr_{sol}^b$, avec $a = 0,333 \pm 0,007$ et $b = 0,186 \pm 0,003$ comme on l'observe dans la figure 3.

En combinant les équations précédentes et en utilisant la loi des gaz parfaits, une expression du débit d'évaporation permettant de tenir compte de la diffusion et de convection naturelle dans la phase vapeur peut être dérivée :

$$E = \frac{4RDM_v P_v}{\bar{R}T_s} \left(1 + 0,333 \left[\frac{P_v M_v g}{(P_a - P_v) M_a v_a^2} R^2 \right]^{0,186} \right) \quad (2)$$

Ce modèle a été comparé aux données expérimentales (voir figures 1 et 2 (ligne rouge pointillée)). Une bonne estimation des expériences a été observée lorsque le substrat est chauffé, et l'écart était de moins de 7%. Cependant, à température ambiante, ce modèle a surestimé le taux d'évaporation de 20%.

Il est à noter que le modèle développé est proche de celui proposé par Kelly-Zion [22] à température ambiante et testé sur des gouttelettes de quatre liquides (le 3-méthylpentane, l'hexane, le cyclohexane et l'heptane) de tailles et de volatilités différentes. Les valeurs obtenues pour le coefficient a et l'exposant b de la contribution convective sont légèrement différents ; dans leur situation a et b sont égaux à 0,310 et 0,216, respectivement, soit des écarts relatifs de 7% pour a et 14% pour b . Cependant, s'ils ont observé un bon accord avec les liquides étudiés, leur modèle surestime également nos données à température ambiante. Dans leur étude, les auteurs ont déjà mentionné la nécessité d'affiner leur modèle pour de petites gouttelettes à température ambiante.

4. Conclusion

En conclusion, la contribution du transport atmosphérique convectif a été étudiée lors de l'évaporation d'une goutte sessile d'éthanol. Si un écart a été observé entre les expériences et le modèle isotherme quasi-stationnaire contrôlé par diffusion de la vapeur dans l'air pour des conditions gravitaires terrestres, un bon accord a été observé en l'absence de gravité, quelle que soit la température du substrat. Ces résultats ont validé les hypothèses inhérentes au modèle en μg et par conséquent mis en évidence le fait que la sous-estimation de ce modèle est due à la contribution de la convection en phase gazeuse qui se développe sous l'action de la gravité et qui n'avait jusque là pas été prise en compte. L'étude de l'origine du transport convectif a révélé que l'aspect solutal était dominant et un modèle combinant le transport diffusif et convectif a été proposé. Ce modèle étendu montre un bon accord avec les données expérimentales quelle que soit la température du substrat, excepté pour la température ambiante où le modèle peut exiger un raffinement.

Références

- [1] R. Picknett and R. Bexon, *Journal of Colloid and Interface Science*, vol. 61, no. 2, pp. 336–350, 1977.
- [2] H. Hu and R. G. Larson, *J. Phys. Chem. B*, vol. 106, no. 6, pp. 1334–1344, 2002.
- [3] R. D. Deegan, O. Bakajin, T. F. Dupont, G. Huber, S. R. Nagel, and T. A. Witten, *Physical Review E*, vol. 62, no. 1, p. 756, 2000.
- [4] L. V. Govor, G. Reiter, G. H. Bauer, and J. Parisi, *Applied Physics Letters*, vol. 84, p. 4774, 2004.
- [5] V. H. Chhasatia, A. S. Joshi, and Y. Sun, *Applied Physics Letters*, vol. 97, no. 23, pp. 231909–231909–3, Dec. 2010.
- [6] L. Pauchard, F. Parisse, and C. Allain, *Physical Review E*, vol. 59, no. 3, 1999.
- [7] H. Y. Erbil and R. A. Meric, *J. Phys. Chem. B*, vol. 101, no. 35, pp. 6867–6873, Aug. 1997.
- [8] K. S. Lee, C. Y. Cheah, R. J. Copleston, V. M. Starov, and K. Sefiane, *Colloids and Surfaces A*, vol. 323, no. 1–3, pp. 63–72, Jun. 2008.
- [9] H. Gelderblom, Á. G. Marín, H. Nair, A. van Houselt, L. Lefferts, J. H. Snoeijer, and D. Lohse, *Phys. Rev. E*, vol. 83, no. 2, p. 026306, Feb. 2011.
- [10] B. Sobac and D. Brutin, *Langmuir*, vol. 27, no. 24, pp. 14999–15007, Dec. 2011.
- [11] S. David, K. Sefiane, and L. Tadrist, *Colloids and Surfaces A*, vol. 298, no. 1–2, pp. 108–114, 2007.
- [12] W. D. Ristenpart, P. G. Kim, C. Domingues, J. Wan, and H. A. Stone, *Phys. Rev. Lett.*, vol. 99, no. 23, p. 234502, Dec. 2007.
- [13] K. Sefiane and R. Bennacer, *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 667, pp. 260–271, 2011.
- [14] B. Sobac and D. Brutin, *Phys. Rev. E*, vol. 86, no. 2, p. 021602, Aug. 2012.
- [15] F. Girard, M. Antoni, and K. Sefiane, *Langmuir*, vol. 24, pp. 9207–9210, Sep. 2008.
- [16] M. Ait Saada, S. Chikh, and L. Tadrist, *Physics of Fluids*, vol. 22, p. 112115, 2010.
- [17] L. Bin, R. Bennacer, and A. Bouvet, *Applied Thermal Engineering*, vol. 31, no. 17–18, pp. 3792–3798, Dec. 2011.
- [18] F. Girard, M. Antoni, S. Faure, and A. Steinchen, *Colloids and Surfaces A*, vol. 323, no. 1–3, pp. 36–49, Jun. 2008.
- [19] Y. O. Popov, *Phys. Rev. E*, vol. 71, no. 3, p. 036313, Mar. 2005.
- [20] F. Carle, B. Sobac, and D. Brutin, *Journal of Fluid Mechanics*, 712, pp 614-623, 2012
- [21] D. Green and R. Perry, *Perry's Chemical Engineers' Handbook, Eighth Edition*, 8th ed. McGraw-Hill Professional, 2007.

[22] P. L. Kelly-Zion, C. J. Pursell, S. Vaidya, and J. Batra, *Colloids and Surfaces A*, vol. 381, no. 1–3, pp. 31–36, May 2011.

Remerciements

Les auteurs tiennent à remercier le « Centre National d'Études Spatiales » pour leur soutien financier ainsi que pour les campagnes de vols paraboliques conduits à Bordeaux Mérignac. Nous remercions Novespace pour leur assistance durant les vols ainsi que Pierre Lantoine et Antoine Diana pour leur soutien technique et amical.