



*Thèse*  
*présentée pour obtenir le titre de*  
*Docteur de l'Institut National Polytechnique de Toulouse*  
*Spécialité : Dynamique des Fluides*

---

# **Etude des écoulements diphasiques dans les mini-canaux d'une pile à combustible**

*par*

Jean-Baptiste DUPONT

Thèse soutenue le 20 décembre 2007 devant le jury composé de :

M. Stéphane Zaleski	Président
M. François Feuillebois	Rapporteur
M. Christophe Clanet	Rapporteur
M. Peter Spelt	Membre
M <sup>me</sup> Anna Maria Morgante	Membre
M. Dominique Legendre	Directeur de thèse
M. Jean Fabre	Directeur de thèse

N° d'ordre : 2585

## Résumé

Le travail de cette thèse concerne l'étude des écoulements diphasiques dans les mini-canaux d'une pile à combustible. Ces canaux, de taille millimétrique, ont un double rôle d'alimentation de la pile en combustibles gazeux et d'évacuation de l'eau produite. Il a été montré expérimentalement que la configuration d'écoulement a un impact direct sur les performances de la pile. L'objectif est donc de progresser dans la compréhension des mécanismes physiques présents dans ces canaux. Pour cela, l'outil de simulation numérique JADIM est développé pour modéliser la physique de la ligne triple afin de permettre la description des écoulements diphasiques et les transitions entre configurations, où la mouillabilité joue un rôle déterminant. Deux phénomènes physiques sont essentiellement étudiés : la migration dans le canal de gouttelettes formées par l'introduction d'eau dans le canal, et l'évolution et la stabilité de la répartition spatiale des phases lors du remplissage progressif des canaux.

Mots-clés : Pile à combustible, Mini-canal, Ecoulements diphasiques, Gouttes, Mouillage, Volume of Fluid, Simulation numérique, Transition, Instabilités

## Abstract

This thesis deals with the study of two-phase flows inside fuel cell mini channels. The functions of these millimetre-size channels are to supply the cell by gas fuels and to evacuate the water generated by the reaction. It has been shown by experiments that flow configurations have a direct impact on the cell performances. The aim of this work is to progress in the understanding of the physical mechanisms involved inside the channels. The numerical code JADIM is developed to model the dynamics and the hysteresis of the contact line in order to describe two-phase flows in such geometry and the transitions between configurations, where wetting phenomenon is determinant. Two physical phenomena are principally studied : the migration of droplets formed by the production of water inside the channel, and the evolution and the stability of the spatial repartition of phases when the channel is progressively filled.

Key words : Fuel cell, minichannel, two-phase flows, drops, wetting, Volume of Fluid, numerical simulation, transition, instabilities.



## Remerciements

Ce travail a été réalisé au sein du Groupe Interface de l'IMFT, et a bénéficié du support financier de RENAULT et de l'ADEME.

Je remercie tout d'abord les membres de mon jury de thèse, parmi lesquels Stéphane Zaleski qui en a assuré la présidence, Stéphane Clanet et François Feuillebois qui ont assuré la tâche de rapporteur. Je remercie particulièrement Peter Spelt que j'avais eu le plaisir de rencontrer quelques mois avant ma soutenance, et qui a accepté de venir spécialement de Londres pour évaluer mon travail.

Je remercie par ailleurs Anna Maria Morgante d'avoir assuré le suivi scientifique de la thèse pour RENAULT.

Je remercie chaleureusement mes directeurs de thèse Dominique Legendre et Jean Fabre pour leur encadrement. Grâce à l'un et à l'autre, j'ai pu rentrer dans les joies des écoulements diphasiques, de la capillarité, du mouillage, en bénéficiant à la fois du regard du numéricien et de l'expérimentateur.

Je remercie les services techniques et administratifs essentiels pour qu'une thèse et une soutenance se passe au mieux : Gilles Martin et l'indispensable Service informatique, Muriel Sabater et la reprographie, ainsi que Marie-Hélène du secrétariat du Groupe Interface.

J'ai maintenant terminé de hanter les couloirs du Groupe Interface. Tout a commencé en 2001 lorsque je suis venu rencontrer Jacques Magnaudet, alors responsable du Groupe, pour lui demander de faire un stage de découverte de la recherche. Jacques m'a alors confié à François Charru, qui fut le premier chercheur que j'ai vu « chercher » ! Difficile a priori de s'étonner devant le mouvement d'un grain sur un lit de grains... et pourtant ! Découvrir telle loi, comprendre tel comportement, « passer du phénomène au fondement », j'ai pu voir à quel point c'était enthousiasmant !

Je remercie tous les autres membres du Groupe, parmi lesquels Frédéric, Catherine, Véronique, Patricia, Wladimir... qui m'ont beaucoup enrichi de diverses discussions de bout de couloir.

Si ces années furent aussi agréables, c'est également grâce à la qualité des thésards, post-docs, nouveaux permanents du Groupe : Jiri, Jean-Rémi, Emeline, Axel, Thomas, Bernardo, Eric, Richard, Yacine, David, Yannick, Marie, Hamdi, Vincent, Annaïg... Beaucoup de pays étaient représentés, et qui sont maintenant autant d'invitations au voyage : Congo (aller chasser le croco avec Richard), Brésil (se manger un demi-boeuf au resto avec Eric), Algérie (à redécouvrir avec Yacine pour guide), Tunisie avec Hamdi, Mexique avec Bernardo, République Tchèque avec Jiri...

Bien entendu, j'ai une pensée toute particulière pour Axel et Thomas, grâce à qui les longues

heures bercées par le bruit de nos claviers ont été si agréables!!

Je voudrais remercier à nouveau Dominique. Je dirais presque que tu fus pour moi un directeur de thèse idéal! Surbooké mais totalement disponible, avec un regard toujours pertinent, et toujours une longueur d'avance sur mes problèmes, mes interrogations... Parmi les meilleurs moments, je garderai en mémoire tous ces échanges de mails à analyser les résultats des simulations, souvent tard dans la nuit, parfois entre samedi et dimanche, ou éventuellement séparés par quelques milliers de kilomètres. Quant à la fin de la thèse, elle fut pour moi particulièrement épique entre naissances, exil alsacien et nouveau métier! J'ai pu ressentir parfois comme une légère fatigue... Je voudrais te remercier profondément pour ton soutien sans faille et tes encouragements. Si j'ai pu terminer la rédaction et soutenir cette thèse, c'est bien grâce à toi!

Je voudrais dédier ce travail à ma famille et mes parents, et particulièrement à Caroline. Ce titre de docteur, je te le dois également! Tu as su créer les conditions et être le soutien qui m'ont permis d'aller jusqu'au bout. Et, *last but not least*, une petite pensée pour Louise et Bénédicte qui font la joie de leur papa!

# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>1</b>
1.1	Un problème d'énergie . . . . .	1
1.2	La pile à combustible : bref aperçu historique . . . . .	2
1.2.1	Principe général de fonctionnement . . . . .	3
1.2.2	Gestion de l'eau . . . . .	6
1.3	Ecoulements diphasiques en minicanaux . . . . .	8
1.3.1	Caractéristiques des écoulements diphasiques . . . . .	8
1.3.2	Régimes d'écoulement . . . . .	10
1.3.3	Synthèse bibliographique des écoulement en minicanaux . . . . .	14
1.3.4	Transition entre régimes . . . . .	19
1.3.5	Bilan de l'influence des différents paramètres . . . . .	23
1.4	Ecoulements diphasiques en minicanaux de pile à combustible . . . . .	27
1.4.1	Présentation . . . . .	27
1.4.2	Ecoulements diphasiques observés . . . . .	28
1.4.3	Influence de différents paramètres géométriques et physiques . . . . .	28
1.4.4	Commentaires . . . . .	31
1.5	Position du problème . . . . .	31
1.5.1	Production d'eau et alimentation en gaz . . . . .	32
1.5.2	Influence des débits aux parois sur l'écoulement . . . . .	34
1.5.3	Influence de la géométrie sur l'écoulement . . . . .	35
1.5.4	Paramètres essentiels du problème . . . . .	37
1.5.5	Nombres adimensionnels pour une pile en fonctionnement . . . . .	40
1.6	Conclusion . . . . .	41
<b>2</b>	<b>Le code JADIM</b>	<b>45</b>
2.1	Simulation du mouillage : méthodes numériques . . . . .	45
2.1.1	Méthodes intégrales de frontière . . . . .	46
2.1.2	Méthodes lagrangiennes . . . . .	48
2.1.3	Méthodes eulériennes . . . . .	49
2.2	Le code de calcul JADIM . . . . .	52

2.2.1	Le modèle à un fluide . . . . .	53
2.2.2	Equations de Navier-Stokes . . . . .	55
2.2.3	La force capillaire . . . . .	58
2.2.4	Transport du taux de présence . . . . .	60
2.2.5	Bilan . . . . .	62
2.3	Tests additionnels sur le lissage du terme capillaire . . . . .	62
2.3.1	Cas statique : goutte à l'équilibre . . . . .	62
2.3.2	Cas dynamique : ascension d'une bulle dans un fluide au repos . . . . .	66
2.3.3	Synthèse . . . . .	68
2.4	Conclusion . . . . .	69
<b>3</b>	<b>Modélisation numérique du mouillage</b>	<b>71</b>
3.1	Modèle physique . . . . .	71
3.1.1	Angle statique . . . . .	71
3.1.2	Angle dynamique . . . . .	71
3.1.3	Hystérésis de l'angle de contact . . . . .	75
3.1.4	Conséquence de l'hystérésis pour la pile à combustible . . . . .	77
3.2	Implémentation numérique . . . . .	78
3.2.1	Imposer l'angle de contact . . . . .	78
3.2.2	Angle statique . . . . .	79
3.2.3	Angle dynamique . . . . .	79
3.2.4	Hystérésis de l'angle de contact . . . . .	80
3.2.5	Bilan . . . . .	80
3.2.6	Implémentation en 3D . . . . .	80
3.3	Exemples de validation . . . . .	82
3.3.1	Goutte à l'équilibre sur une paroi hydrophile . . . . .	82
3.3.2	Flaque à l'équilibre sur une paroi hydrophobe . . . . .	84
3.3.3	Capillaire avec deux parois de mouillabilités différentes . . . . .	87
3.3.4	Goutte sur une paroi horizontale dans un champ de gravité . . . . .	89
3.3.5	Hystérésis de l'angle de contact . . . . .	91
3.3.6	Dynamique du mouillage spontané . . . . .	95
3.4	Conclusion . . . . .	101
<b>4</b>	<b>Mesures expérimentales de l'hystérésis</b>	<b>103</b>
4.1	L'hystérésis . . . . .	103
4.2	Dispositif expérimental . . . . .	105
4.3	Méthodes de mesures . . . . .	105
4.4	Résultats . . . . .	106
4.5	Remarques concernant les mesures . . . . .	109

4.5.1	Particularités liées à la GDL . . . . .	111
4.5.2	Echauffement lié au spot d'éclairage . . . . .	111
4.6	Perspectives . . . . .	112
4.6.1	Température . . . . .	113
4.6.2	Nature du gaz . . . . .	114
4.6.3	Physico-chimie des interfaces . . . . .	114
4.7	Bilan . . . . .	115
<b>5</b>	<b>Migration d'une goutte dans un canal 2D</b>	<b>117</b>
5.1	Déformation et mise en mouvement sous l'effet de la gravité . . . . .	117
5.2	Déformation et mise en mouvement sous l'effet du cisaillement . . . . .	126
5.3	Gouttes dans un canal de pile . . . . .	131
5.3.1	Influence de la gravité . . . . .	131
5.3.2	Effet du débit de gaz . . . . .	134
5.4	Conclusion . . . . .	137
<b>6</b>	<b>Migration de gouttes dans un canal 3D de pile</b>	<b>139</b>
6.1	Migration of liquid droplets inside a mini-channel . . . . .	139
6.1.1	Effect of the initial position . . . . .	140
6.1.2	Effect of gravity . . . . .	141
6.1.3	Effect of the wettability contrast . . . . .	144
6.1.4	Effect of the temperature . . . . .	144
6.1.5	Effect of coalescence . . . . .	146
6.2	Bilan : capture ou migration ? . . . . .	148
6.2.1	Effet de la gravité . . . . .	148
6.2.2	Nature de la migration . . . . .	150
6.2.3	Vitesse de migration . . . . .	153
6.2.4	Synthèse . . . . .	157
6.3	Conclusion . . . . .	159
<b>7</b>	<b>Remplissage quasi-statique d'un canal de pile</b>	<b>161</b>
7.1	Introduction . . . . .	161
7.2	Configurations spatiales des phases dans un section carrée . . . . .	162
7.2.1	Configurations initiales . . . . .	162
7.2.2	Scénario de remplissage . . . . .	162
7.2.3	Configurations conditionnelles . . . . .	164
7.3	Etude du canal de pile . . . . .	168
7.3.1	Influence du rapport de forme . . . . .	168
7.3.2	Influence des angles de contact . . . . .	170



7.4	Bilan . . . . .	172
<b>8</b>	<b>Instabilités et transitions en mini-canaux et mini-tubes</b>	<b>175</b>
8.1	Instabilité visqueuse en canal 2D . . . . .	176
8.2	Instabilité capillaire . . . . .	186
8.2.1	En tube . . . . .	186
8.2.2	En canal 3D . . . . .	190
8.3	Ecoulement à phases séparées stable en tube et canal . . . . .	193
8.4	Transitions capillaires . . . . .	196
8.4.1	En canal 3D . . . . .	196
8.4.2	En canal 3D de pile . . . . .	202
8.5	Conclusion . . . . .	204
	<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>205</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>209</b>

# Chapitre 1

## Introduction

### 1.1 Un problème d'énergie

La situation énergétique mondiale présente quelques soucis d'importance. La pollution atmosphérique, par l'influence des gaz à effet de serre, a une part importante dans le réchauffement climatique dont les conséquences sont d'ordre tant écologique qu'économique. De plus, les produits pétroliers, dont l'utilisation contribue à cette pollution, sont nos ressources énergétiques les plus utilisées et pour le moment les moins coûteuses. Or, ces produits pétroliers ne sont pas en quantité illimitée, alors même que la consommation des pays occidentaux, mais également des pays à économie émergentes, la Chine en tête, ne cesse de croître.

La prise de conscience de l'urgence de la situation a considérablement évoluée depuis ces quelques années. En témoigne la remise du prix Nobel de la Paix en cette année 2007 à l'ancien vice-président américain Al Gore pour son documentaire *An inconvenient Truth* et au GIEC pour « leurs efforts de collecte et de diffusion des connaissances sur les changements climatiques provoqués par l'Homme et pour avoir posé les fondements pour les mesures nécessaires à la lutte contre ces changements ». En témoigne le nombre relativement important de rapports parlementaires français sur le sujet depuis 2005, parmi lesquels [Cabal & Gatignol \(2005\)](#), [Kergueris & Saunier \(2005\)](#), [Laffitte & Saunier \(2006\)](#), [Bataille & Birraux \(2006\)](#). Cette année 2007 est également marquée par la tenue d'un 'Grenelle de l'Environnement', réunissant pour la première fois autour d'une même table Etat, ONG, industriels, et collectivités territoriales.

Pour répondre à cette urgence, et notamment pour préparer l'ère après-pétrole, les constructeurs automobiles ont entrepris depuis plusieurs années le développement d'un moteur, constitué d'une pile à combustible, qui fonctionne à partir d'hydrogène. En effet, les sous-produits générés par la pile sont très peu polluants, et le rendement énergétique est élevé. Le travail présenté dans

ce document s'inscrit dans ce contexte et est soutenu par RENAULT et l'ADEME. L'objectif est de progresser dans la compréhension des écoulements diphasiques présents dans les canaux d'alimentation de la pile à combustible dont la fonctionnalité est d'amener les combustibles gazeux ( $H_2$  et  $O_2$ ) et de recueillir l'eau, produit de la réaction.

Après un bref historique, la présentation du fonctionnement de la pile à combustible de type PEMFC permet de placer la thèse dans son contexte industriel et scientifique. Notamment nous présentons le problème délicat et crucial de la gestion de l'eau dans les canaux d'alimentation de la pile à combustible.

Nous présentons ensuite une bibliographie centrée sur les études portant sur les écoulements diphasiques en mini-tubes et mini-canaux. Une attention particulière est ensuite portée sur le seul travail expérimental disponible dans des conditions de fonctionnement d'une pile à combustible. La dernière section présente les ordres de grandeurs des paramètres contrôlant les écoulements diphasiques dans les mini-canaux des piles à combustibles.

## 1.2 La pile à combustible : bref aperçu historique

Plusieurs types de pile existent, caractérisées par les électrolytes et les températures de fonctionnement (SOFC, MCFC, PAFC, AFC... : cf. Annexe). Nous nous intéresserons essentiellement à la pile à membrane échangeuse de proton PEMFC (Proton Exchange Membrane Fuel Cell) dont les domaines d'application concernent à la fois les moyens de transport que les appareils portables (téléphones, ordinateurs...).

Grove, juriste à la Royal Institution de Londres, découvrit le principe de fonctionnement de la pile à combustible en 1839, en travaillant sur l'électrolyse de l'eau. Cette découverte tomba ensuite dans l'oubli jusque dans les années 1950 où Bacon effectua des développements déterminants. Les premières utilisations de pile eurent lieu dans le domaine spatial avec les missions Gemini en 1963 et Apollo en 1968. Quelques prototypes pour l'industrie automobile furent mis au point.

Le premier choc pétrolier en 1973 conduisit de nombreux pays à vouloir disposer de ressources énergétiques de manière à être moins tributaires du cours du pétrole. La recherche se développa donc aux Etats-Unis, au Japon et en Europe. De nature surtout fondamentale, elle était centrée sur les différents éléments de la pile : la membrane, les électrodes, l'électrolyte... En 1970, la société DuPont de Nemours mis au point la membrane Nafion utilisée dans la pile PEMFC.

Mais la pile présente encore un certain nombre de points durs : un coût élevé, un rapport volume/puissance important. Ces difficultés conduisent, dans les années 1980, à un ralentissement de la recherche en France alors que les Etats-Unis, le Japon et l'Allemagne poursuivent l'étude.

Dans les années 1990, les avancées technologiques, ainsi que la prise de conscience des problèmes environnementaux (énergie fossile en diminution, aggravation de la pollution atmosphérique...), conduisent à une relance de la recherche sur la pile.

Aujourd'hui les premiers prototypes de véhicules équipés de pile sont présentés et les constructeurs annoncent la mise sur le marché en série dans 10 ou 20 ans. Ce délai s'explique par le fait que des problèmes demeurent (comme le coût de la pile), mais aussi les questions concernant l'hydrogène (comme sa production, son stockage, sa distribution).

### 1.2.1 Principe général de fonctionnement

Une pile PEM est un générateur électrochimique qui fonctionne à basse température. La figure (1.1) présente le schéma de fonctionnement d'une pile à combustible pour une application embarquée. Trois éléments essentiels en composent le coeur : une anode, une électrolyte et une

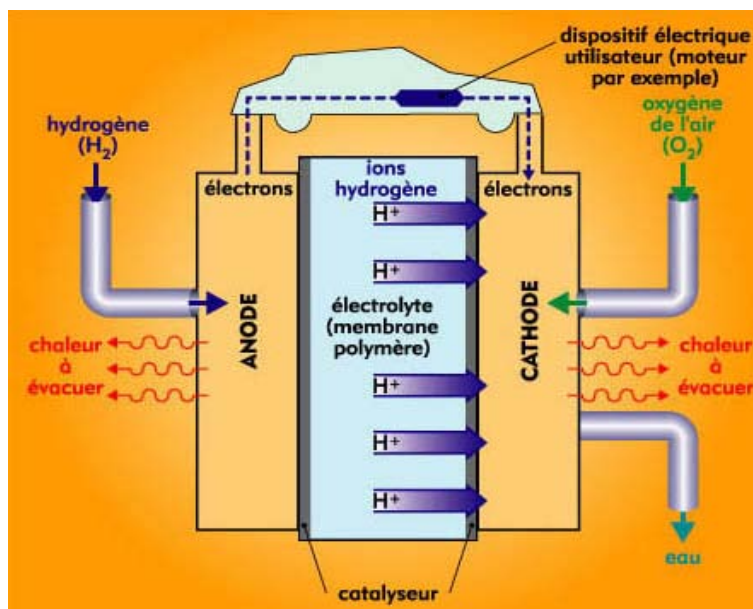
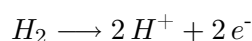
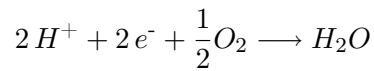


FIG. 1.1 – Schéma d'une pile à combustible - Source : CEA

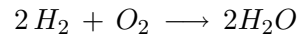
cathode. L'anode est alimentée en continu par un combustible, l'hydrogène, dont elle réalise l'ionisation :



La cathode, alimentée par le comburant, généralement l'oxygène de l'air, est le lieu de la réduction de l'oxygène.



La circulation des électrons entre l'anode et la cathode, par un circuit électrique extérieur, donne naissance à un courant électrique. La recombinaison de ces deux produits de réaction conduit à la production d'eau et de chaleur.



A la différence des autres piles électrochimiques (batteries) dans lesquelles les matériaux qui composent les électrodes réagissent jusqu'à rendre le processus inactif, la pile à combustible a sa structure (électrodes, électrolyte) qui ne réagit pas. Les réactifs sont introduits et les produits évacués en permanence. Ceci permet d'obtenir une durée de vie importante.

## La membrane

La membrane placée entre l'anode et la cathode a pour rôle de permettre le transfert des protons de l'anode à la cathode, d'être un isolant électronique tout en étant le moins perméable possible aux gaz ( $H_2$  et  $O_2$ ). La plus utilisée, le Nafion produit par l'entreprise américaine DuPont de Nemours, est un polymère à structure perfluorée (de type Téflon) sur lesquels sont greffés des groupements sulfonates  $SO_3^-$ . Son épaisseur est de  $30 \mu m$  à  $150 \mu m$ . Un aspect essentiel concernant le fonctionnement de la pile est la nécessité d'être correctement hydratée pour avoir une bonne conductivité ionique : cette conductivité est multipliée par dix entre l'état sec et l'état humide.

## Les électrodes

Les électrodes, d'une épaisseur de  $400 \mu m$  environ, regroupent une zone active, d'épaisseur de l'ordre de  $50 \mu m$ , siège des demi-réactions d'oxydoréduction, et d'une zone de diffusion gazeuse appelée GDL.

**La zone de diffusion gazeuse (GDL) :** La zone de diffusion gazeuse est constituée d'un matériau carboné poreux dont le volume interstitiel contient du Téflon. Le Téflon est le nom commercial du P.T.F.E., le polytétrafluoroéthylène, qui est un polymère hydrophobe. Son rôle est d'acheminer les réactifs de manière homogène sur toute la surface de la zone active et d'évacuer l'eau produite à la cathode.

**La zone active :** La zone active est constituée du même milieu carboné, avec moins d'agents hydrophobes, auquel est ajouté un catalyseur sous forme de grains de platine. La réaction élec-

trochimique a lieu lorsque se rencontrent au même point le gaz réactif, les protons, les électrons et le catalyseur.

## Les plaques bipolaires

Ces plaques bipolaires, en acier inoxydable ou en graphite, sont gravées de mini-canaux de taille millimétrique qui assurent, sur toute la surface de la GDL (zone de diffusion gazeuse de l'électrode), la distribution des gaz réactifs ainsi que l'évacuation de l'eau produite et des gaz qui n'ont pas réagi (azote, excès d'oxygène ...).

## Fonctionnement

Une cellule (figure 1.2) est constituée d'un ensemble Electrode-Membrane-Electrode (EME) et des plaques bipolaires. Un circuit de refroidissement est également présent : la température optimale de fonctionnement est environ de  $80^{\circ}C$ . Le *stack*, ou empilement, est l'association de plusieurs cellules, souvent en série. La puissance totale  $P_e$  de la pile dépend du nombre  $n$  de cellules du *stack* et de la surface  $S_m$  de la membrane. Elle se trouve dans une gamme allant de 1 W à 1 MW. Le point de fonctionnement optimal d'une cellule se situe généralement autour des valeurs suivantes : la tension  $V_c \simeq 0.65 V$  et la densité de courant  $j \simeq 0.45 A.cm^{-2}$ . La puissance totale s'écrit donc :

$$P_e = n.V_c.j.S_m$$

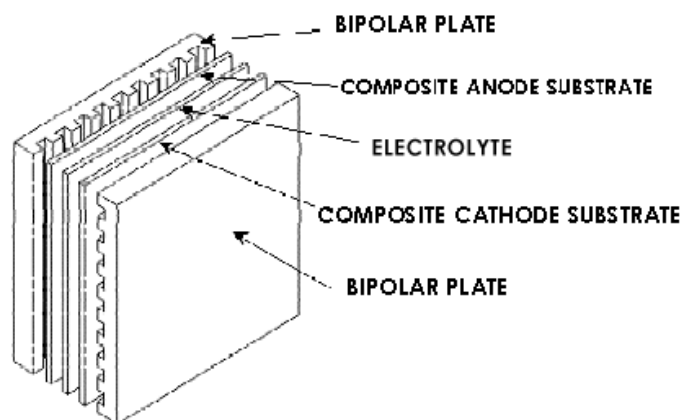


FIG. 1.2 – Cellule d'une pile à combustible. Sont représentées de l'extérieur vers le centre de la cellule : les deux plaques bipolaires, les deux électrodes (anode et cathode) et la membrane au centre.

### 1.2.2 Gestion de l'eau

La gestion de l'eau est cruciale pour avoir un fonctionnement optimal de la pile, notamment dans la membrane et dans les canaux de distribution.

#### Dans la membrane

L'eau liquide est produite par réaction chimique dans la zone active de la cathode. Or, chaque proton traversant la membrane de l'anode à la cathode est accompagné par une à trois molécules d'eau. Il s'agit du flux électro-osmotique, dirigé de l'anode à la cathode. Ce flux dépend de la densité de courant. Il croît lorsque la densité de courant augmente.

La membrane se trouve ainsi davantage hydratée du côté de la cathode que du côté de l'anode. Cela génère un flux diffusif au travers de la membrane de la cathode à l'anode. Ce phénomène dépend de la densité de courant produite.

Nous avons vu qu'il est essentiel que la membrane soit correctement humidifiée. Si ce n'est pas le cas, sa résistivité au transfert des protons augmente, ce qui induit une chute de la densité de courant générée. La production d'eau à la cathode, accompagnée de la diffusion de la cathode à l'anode permettent cette humidification. Cependant, le flux électro-osmotique et l'évaporation de l'eau liquide peuvent entraîner l'assèchement de la membrane et des zones actives. En effet, si les gaz introduits dans la pile sont dépourvus de vapeur d'eau, l'eau présente à la membrane va se vaporiser jusqu'à ce que la pression partielle de vapeur d'eau corresponde à la pression de vapeur saturante, ce qui peut provoquer l'assèchement de la membrane. Pour éviter cette situation, la technique généralement employée est l'utilisation d'un humidificateur externe qui sature en vapeur d'eau le gaz entrant à la température de la cellule.

Au sein de la cathode, l'évacuation de l'eau liquide produite dans la zone active est opérée par pression capillaire dans la zone de diffusion. Elle doit se faire de manière à ne pas entraver l'accès du gaz vers la zone active. L'eau liquide à évacuer provient donc d'un bilan entre trois phénomènes : la production par réaction électrochimique, le flux électro-osmotique et le flux diffusif. A cela, il convient d'ajouter le changement de phase présent au sein des canaux lorsque les conditions de fonctionnement atteignent  $80^{\circ}C$ .

#### Dans les canaux de distribution

Le rôle de ces canaux est d'évacuer l'eau produite au sein de l'EME et de permettre la distribution homogène du gaz réactif. Il s'agit donc d'avoir un régime d'écoulement diphasique qui permette de réaliser ces deux aspects. Par exemple, si le débit de gaz n'est pas assez important, la quantité d'eau produite et présente dans les canaux sera telle qu'elle remplira tout le volume.

On parle alors d'engorgement des canaux. Le gaz ne pourra plus diffuser au travers de l'électrode jusqu'à la membrane. Cela diminuera la surface active de la membrane et donc le rendement de la pile.

Le changement de phase dans les canaux est contrôlé par deux pressions. La première est la pression de vapeur saturante  $P_{sat}$  qui est la pression partielle de l'eau lorsque l'eau liquide et l'air humide sont en équilibre thermodynamique : aucun changement de phase ne se produit. Elle dépend de la température. La deuxième est la pression partielle de vapeur d'eau effective  $P_w$ . Le taux de condensation est proportionnel à  $P_w - P_{sat}$  et le taux d'évaporation à  $P_{sat} - P_w$ .  $P_{sat}$  dépend donc de la température et  $P_w$  est relié à la pression opératoire  $P_t$  et au coefficient stoechiométrique  $\lambda$  de l'oxygène ( $\lambda = 1.0$  à  $2.0$ ) (Larminie & Dicks (1999)). La pression opératoire  $P_t$  est fixée lors du fonctionnement de la pile. Sa valeur est comprise entre  $1\text{ bar}$  et  $4\text{ bar}$ . On voit ainsi qu'il est essentiel de maîtriser les conditions opératoires (température, pression, stoechiométrie des gaz . . .) de la pile pour contrôler les changements de phase au sein des canaux.

La figure (1.3) présente deux canaux de distribution en parallèle, gravés dans une plaque bipolaire. Ils se présentent comme une succession de parties rectilignes et de coudes (figure 1.4). Ces canaux de distribution ont la particularité d'être de taille millimétrique et de section carrée

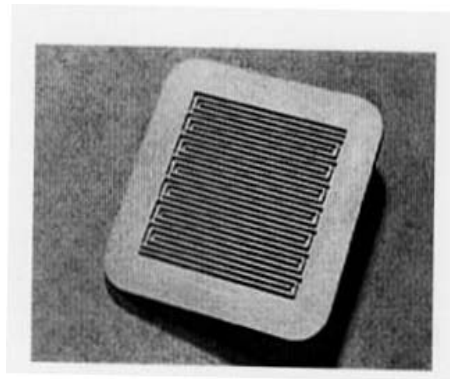


FIG. 1.3 – Canaux de distribution (ici 2 en parallèle) d'une plaque bipolaire de  $100\text{ cm}^2$  environ  
- Source : CEA

ou rectangulaire. Ils présentent en outre des coudes (figure 1.4). De plus, l'une des faces correspond à la zone de diffusion gazeuse (GDL) de l'électrode, donc est plutôt non-mouillante. Les trois autres faces des canaux correspondent à la plaque bipolaire, en acier ou graphite, donc sont plutôt mouillantes. Ces différences de mouillabilité de paroi ont pour but d'éviter la présence d'un film d'eau liquide à la face du canal donnant sur l'électrode, ce qui empêcherait la diffusion du gaz dans l'électrode. Nous pouvons ainsi supposer que la tension de surface sera une force prépondérante au vu de la taille du canal et de la forme de la section, et que les propriétés de



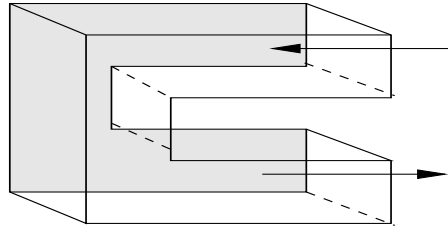


FIG. 1.4 – Exemple de coude - La face arrière correspond à la zone de diffusion gazeuse (GDL) de l'électrode. Les flèches montrent le sens de déplacement de l'écoulement.

mouillabilité des parois auront une influence importante sur le régime d'écoulement diphasique.

### 1.3 Écoulements diphasiques en minicanaux

Nous présentons dans cette section un aperçu bibliographique des écoulements en mini-canaux c'est à dire pour des diamètres inférieurs au centimètre.

Rappelons que pour chaque élément EME d'une pile à combustible ces canaux doivent approvisionner en gaz réactifs l'EME et évacuer l'eau produite. Nous avons indiqué précédemment que le régime d'écoulement joue un rôle important sur le fonctionnement de la pile.

L'objectif est ici de rapporter les informations de la littérature concernant les régimes d'écoulement et les critères de transition actuellement décrits dans la littérature pour des canaux de taille millimétrique ainsi que l'influence des paramètres géométriques et physiques.

Parmi les paramètres physiques, l'attention portera sur l'influence de la température, de la pression, des propriétés physiques des fluides (densité, viscosité dynamique) et surtout sur l'influence de la tension de surface et des propriétés de mouillabilité des parois.

#### 1.3.1 Caractéristiques des écoulements diphasiques

Une analyse dimensionnelle d'un écoulement diphasique gaz-liquide dans un canal lisse avec des phases incompressibles peut être faite pour identifier les nombres adimensionnels pertinents. Les dix paramètres indépendants sont les masses volumiques des fluides  $\rho_L$ ,  $\rho_G$ , les viscosités dynamiques  $\mu_L$ ,  $\mu_G$ , la tension de surface  $\sigma$ , le diamètre du tube ou le diamètre hydraulique du canal  $d_H$ , la constante de gravité  $g$ , l'angle de contact entre l'interface gaz-liquide et la paroi  $\theta$  et les flux  $U_{LS}$  et  $U_{GS}$ . Ces flux, appelés aussi vitesses superficielles, sont le rapport du débit volumique de la phase considérée par la section du tube. Les dimensions étant au nombre de trois (masse, longueur et temps), le théorème II (voir par exemple [Wallis \(1969\)](#), [Barenblatt \(1996\)](#)) indique que l'on peut former 7 nombres adimensionnels indépendants pour ce type d'écoulement,

par exemple :

$$\begin{aligned} \frac{\rho_L - \rho_G}{\rho_L} \quad \theta \quad Eo &= \frac{\Delta \rho g d_H^2}{\sigma} \\ We_{LS} &= \frac{\rho_L d_H U_{LS}^2}{\sigma} \quad We_{GS} = \frac{\rho_L d_H U_{GS}^2}{\sigma} \\ Re_{LS} &= \frac{\rho_L d_H U_{LS}}{\mu_L} \quad Re_{GS} = \frac{\rho_G d_H U_{GS}}{\mu_G} \end{aligned}$$

Le nombre d'Eötvös  $Eo$  compare la force de gravité à la force capillaire, le nombre de Weber  $We$ , l'inertie à la force capillaire, et le nombre de Reynolds  $Re$ , l'inertie à la force visqueuse. Notons que d'autres nombres adimensionnels (nombre de Froude, nombre capillaire ...) peuvent être obtenus par combinaison des nombres ci-dessus.

Comme nous le développerons dans la section 1.5, les ordres de grandeur de ces nombres dans les canaux d'une pile à combustible ( $d_H = 1mm$ ) sont :

$$\begin{aligned} \frac{\Delta \rho}{\rho_L} &\simeq 1 \\ 55^\circ &< \theta < 145^\circ \\ Eo &\simeq 0.14 \\ We_{LS} &= \frac{\rho_L d_H U_{LS}^2}{\sigma} \approx 0 \text{ à } 0,02 \\ We_{GS} &= \frac{\rho_L d_H U_{GS}^2}{\sigma} \approx 0,01 \text{ à } 10 \\ Re_{LS} &= \frac{\rho_L d_H U_{LS}}{\mu_L} \approx 0 \text{ à } 1000 \\ Re_{GS} &= \frac{\rho_G d_H U_{GS}}{\mu_G} \approx 100 \text{ à } 4000 \end{aligned}$$

Le rapport des viscosités est quant à lui tel que :

$$\frac{\mu_L}{\mu_G} \approx 15 \text{ à } 100$$

On peut tirer de ces ordres de grandeur quelques informations utiles sur le rôle respectif des forces en présence. Le nombre d'Eötvös montre que la force de gravité est d'un ordre de grandeur plus faible que la force capillaire. Le nombre de Weber  $We_{LS}$  montre que l'inertie du liquide est négligeable devant la force capillaire. Enfin le nombre de Reynolds  $Re_{GS}$  suggère que la force visqueuse dans le gaz est négligeable devant l'inertie de celui-ci. Par contre on ne peut rien dire des valeurs de  $We_{GS}$  et  $Re_{LS}$  qui peuvent prendre des valeurs plus petites et plus grandes que l'unité. En résumé, on peut s'attendre à des écoulements pour lesquels la gravité, la viscosité du gaz et l'inertie du liquide seront négligeables ou marginales alors que la capillarité reste une force dominante.

### 1.3.2 Régimes d'écoulement

La caractéristique essentielle des écoulements diphasiques en tube ou canal est que la topologie de l'interface est une inconnue du problème qui dépend de nombreux paramètres tels que les propriétés physiques des fluides (densité, viscosité, tension de surface), le débit des deux phases et le diamètre hydraulique. En écoulement diphasique gaz-liquide ou liquide-liquide, l'interface peut adopter des formes variées dont la topologie dépend des conditions d'écoulement, c'est-à-dire des débits et des propriétés physiques des fluides, de la géométrie du domaine d'écoulement, de l'intensité des forces extérieures, etc. Ces formes sont classées en familles, ou configurations d'écoulement. Pour les écoulements en tube, il est d'usage de cartographier ces configurations dans des diagrammes log-log avec les flux de gaz et de liquide, ou toute autre grandeur dérivée de ces flux, pour coordonnées. Initialement la notion de configuration fut introduite à des fins descriptives. Ainsi sont nées les premières cartes de configuration dont la première semble être due à Baker (1954). Ensuite la notion de configuration fut étroitement associée à des objectifs de modélisation : à chaque configuration son modèle d'écoulement. L'ouvrage de Govier & Aziz (1972) fournit une excellente synthèse des efforts qui furent entrepris autour des années 60 pour tenter de prédire les transitions entre configurations à partir de corrélations empiriques. Il illustre aussi les configurations rencontrées en écoulement vertical et horizontal et recensées pour l'essentiel dans le tableau 1.1. Cependant l'approche corrélatoire s'est révélée limitée aux conditions d'écoulement pour lesquels elle avait été validée. Il faut attribuer à Taitel et col. le mérite d'avoir généralisé la notion de modèle physique pour prédire les transitions entre configurations (Taitel & Dukler (1976), Taitel & Barnea (1980), Taitel & Dukler (1980)).

Il n'est pas utile de faire ici une présentation extensive de ces travaux car dans les écoulements auxquels on s'intéresse la force de gravité est faible par rapport à la force capillaire. On va donc se limiter à l'analyse des travaux qui ont été réalisés en micro-gravité ou en petits tubes, sachant qu'ils ont pour dénominateur commun un nombre d'Eötvös nul ou plus petit que l'unité. Dans de telles conditions la galerie des configurations observées se réduit par la disparition de certaines d'entre elles. En premier lieu, on n'observe pas d'écoulement bouillonnant car c'est une situation qui est due essentiellement à la gravité. En second lieu, l'écoulement stratifié disparaît (écoulement en micro-gravité) ou ne tient qu'une place marginale (écoulement en petits tubes). Suo & Griffith (1964) indiquent que pour négliger la force de gravité par rapport à la force capillaire il faut que :

$$Eo = \frac{\Delta\rho g d_H^2}{\sigma} < 0,29 \quad (1.1)$$

Lorsque le critère est satisfait, la tension de surface a pour effet de bloquer complètement la stratification due à la gravité. Les expériences de Suo & Griffith (1964) et de Damianides & Westwater (1988) faites avec de l'eau et de l'air, à température ambiante et à pression atmosphérique, indiquent que la zone de transition entre l'écoulement stratifié et non stratifié correspond à un diamètre hydraulique compris entre 1 mm et 2 mm. Ceci est en accord avec le critère (1.1).

Ce critère exprime également que pour des diamètres hydrauliques suffisamment petits, la prédominance de la tension de surface sur la gravité rend les régimes d'écoulement indépendants de l'orientation du tube. Il n'y aurait donc a priori pas de différences entre un écoulement horizontal et un écoulement vertical dans ces conditions.

Les travaux sur les écoulements en micro-gravité ont commencé dans les années 70 (Hepner *et al.* (1975)) et se sont considérablement renforcés dès la fin des années 80 quand les moyens d'essais en tour à chute libre et en vol parabolique ont été mis à la disposition des chercheurs (Dukler *et al.* (1988); Zhao & Rezkallah (1994); Colin & Fabre (1995); Bousman *et al.* (1996)). Tous ces auteurs s'accordent sur l'existence de trois régimes principaux, l'écoulement à bulles, l'écoulement à poches et bouchons et l'écoulement annulaire. L'étude des écoulements diphasique en petit tubes, qui s'est trouvée enrichie dès la fin des années 90 par le développement des micro-systèmes, confirme ces observations. Des configurations identiques à celles des écoulements diphasiques en micro-gravité ont été observées (Barnea *et al.* (1983)) avec parfois des définitions un peu exotiques (Coleman & Garimella (1999)). On a illustré sur la figure 1.5 quelques écoulements typiques mis en évidence dans un tube de 2 mm avec de l'azote et un mélange d'eau et de glycérol. La carte de configuration correspondante est présentée sur la Figure 1.6.

Inclinaison	Configuration	Variantes	Dénomination anglaise	Caractéristiques
Toutes	A bulles	A bulles A bulles dispersées	Bubbly Dispersed bubbly	Bulles Fines bulles dispersées
Toutes	Intermittent A poches et bouchons		Intermittent Slug	Longues poches de gaz séparées par des bouchons de liquide
Toutes	Annulaire	Annulaire lisse Annulaire à vagues	Smooth annular Wavy annular	Film de liquide, avec une interface lisse ou légèrement ondulée, mouillant la paroi  Film de liquide mouillant la paroi comportant des vagues à l'interface à partir desquels sont entraînés des gouttellettes qui envahissent le noyau gazeux
Horizontal ou incliné	Stratifié	Stratifié lisse Stratifié à vagues	Smooth stratified Wavy stratified	Le gaz et le liquide sont séparés par une interface plane lisse ou avec de légères ondulations  Le gaz et le liquide sont séparés par une interface rugueuse où se développent des vagues et d'où peuvent être entraînés des gouttellettes. La littérature fait état de nombreuses sous configurations sous configurations selon la structure des vagues (capillaire, gravitaire 2D, gravitaire 3D, à rouleau, etc.)
Vertical ou dévié	Bouillonnant		Churn / Frothy	Extension de l'écoulement à poches et bouchons avec des poches déstructurées donnant une apparence chaotique

TAB. 1.1 – configurations rencontrées en écoulement vertical et horizontal

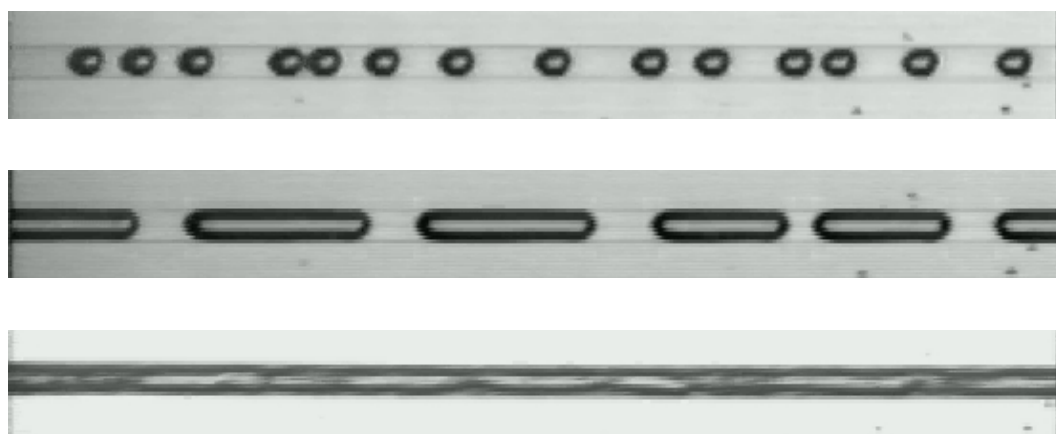


FIG. 1.5 – Quelques écoulements typiques d’après Fabre *et al.* (2004). De haut en bas : écoulement à bulles, écoulement intermittent et écoulement annulaire

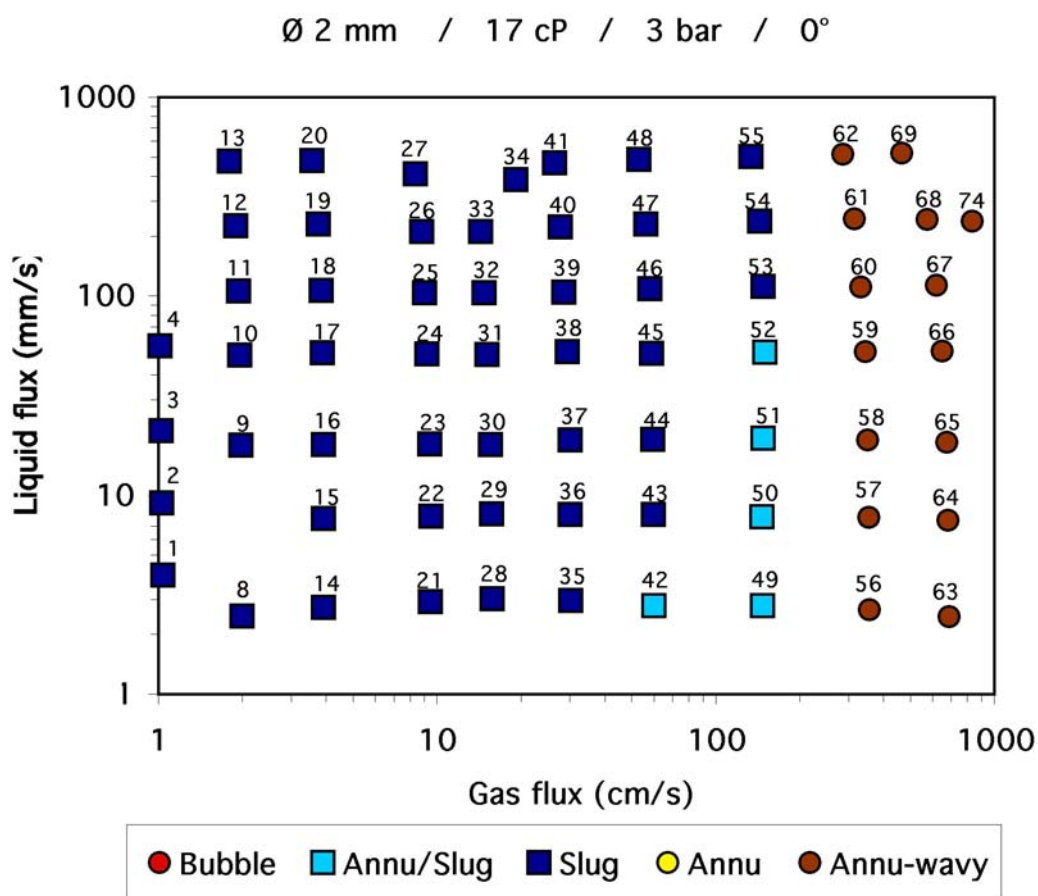


FIG. 1.6 – Exemple de carte de configuration : tube de 2 mm, azote + mélange d’eau et de glycérol à 3 bars d’après Fabre *et al.* (2004)

Comme nous le verrons dans la section suivante, Marchand (1998) montre que les régimes

ayant lieu au sein des canaux de distribution, dans les conditions opératoires d'une pile à combustible, sont :

- le régime stratifié
- le régime intermittent
- le régime annulaire

### 1.3.3 Synthèse bibliographique des écoulement en minicanaux

Les premiers résultats de référence concernant les écoulements en tubes capillaires sont dus à Taylor (1961), Bretherton (1961) et Cox (1964). Ces travaux ont été consacrés à l'étude du film déposé après le passage de bulles cylindriques poussées par le mouvement du liquide. Ils ont permis de préciser que l'épaisseur du film liquide et le rapport de la vitesse de la bulle sur celle du liquide  $V/U$  sont contrôlés par les forces visqueuses et capillaires et s'expriment donc en fonction du nombre capillaire  $Ca = \mu U / \sigma$

Depuis, les études expérimentales pour les faibles diamètres (diamètre inférieur au centimètre) ont porté sur l'influence de l'orientation horizontale ou verticale du tube, sur la géométrie de la section, sur le diamètre du tube (ou le diamètre hydraulique pour des sections non-circulaires). L'eau et l'air sont le plus souvent utilisés, mais également le fréon R134a en équilibre avec sa vapeur, qui présente une tension de surface plus faible que pour l'eau et l'air. L'effet de l'angle de contact fait également l'objet d'expériences. Les études sont toutes effectuées à pression atmosphérique et à température de 20°C. Les mesures sont parfois comparées à la carte de Mandhane *et al.* (1974) et au modèle de Taitel & Dukler (1976) pour faire apparaître les différences et notamment l'influence du diamètre du tube. Cependant ce modèle étant développé pour des écoulements dominés par la gravité, il n'est pas pertinent pour les écoulements dominés par la capillarité.

#### En tube ou canal horizontal

Suo & Griffith (1964) effectuent une des premières étude d'écoulements diphasiques en tube capillaire sub-millimétriques. Ils analysent les écoulements horizontaux en tubes de diamètre de 0.5 à 0.7 mm. Trois configurations d'écoulement sont observées : intermittent, intermittent à bulles dans les bouchons, et annulaire. Ils proposent un critère d'existence du régime stratifié. Un critère de transition entre le *slug* et le *slug-bubbly flow* est également proposé.

Damianides & Westwater (1988) analysent les écoulements diphasiques d'eau/air en tubes horizontaux de verre pyrex de diamètre de 1 à 5 mm. Les vitesses superficielles pour le liquide s'étendent de 0.08 à 10 m/s et pour le gaz de 0.03 à 100 m/s. Cinq configurations d'écoulement sont identifiées : à bulles, intermittent (2 variantes dites plug et slug), à bulles dispersées et an-

nulaire. Ils remarquent que la tension de surface est une variable très importante, dont l'influence grandit lorsque le diamètre du tube diminue.

Triplett *et al.* (1999) étudient les écoulements eau/air dans des tubes horizontaux de diamètre de 1.1 à 1.45 mm et dans des canaux de section semi-triangulaire (triangulaires avec un sommet arrondi) de diamètre hydraulique de 1.09 à 1.49 mm. La vitesse superficielle du liquide est 0.02 à 8 m/s et celle du gaz 0.02 à 80 m/s. Ils montrent que la tension de surface, pour des diamètres petits, rend les caractéristiques d'écoulement indépendantes de l'orientation du tube. Un tube vertical ou horizontal verra les mêmes écoulements diphasiques avec les mêmes transitions.

Coleman & Garimella (1999) font une étude avec de l'eau et de l'air dans des tubes en verre pyrex et des canaux de section rectangulaire en plastique de diamètres hydrauliques de 1.3 à 5.5 mm. Les vitesses superficielles du liquide sont de 0.01 à 10 m/s et du gaz de 0.1 à 100 m/s. Les auteurs identifient sept configurations d'écoulement regroupées sous quatre principales - stratifié, intermittent dispersé et annulaire - qu'ils illustrent par des clichés d'écoulement. A l'examen de ces clichés, on peut s'interroger sur la pertinence des définitions. En premier lieu il n'y a pas d'évidence que l'écoulement dit stratifié à vagues, ne soit pas un écoulement annulaire lisse car rien ne prouve l'absence d'un film à la partie supérieure du tube et l'interface est très légèrement ondulée, sans effet à attendre sur sa rugosité. En second lieu l'écoulement dit à bulles allongées n'est rien d'autre qu'un écoulement intermittent classique. Enfin les deux variantes d'écoulement annulaire n'ont pas lieu d'être distinguées à moins d'affiner l'analyse à partir de la longueur d'onde des vagues. Cet article est un bon exemple de la subjectivité visuelle qui est trop souvent la règle dans la définition des configurations alors que celle-ci doit être associée à une démarche de modélisation.

Yang & Shieh (2001) utilisent de l'eau et de l'air et mais aussi du fréon R-134a (dont la tension de surface est 10 fois plus petite que celle de l'eau). Des tubes horizontaux circulaires de diamètre de 1 à 3 mm en verre Pyrex sont utilisés. La vitesse superficielle du liquide est de 0.005 à 5 m/s et celle du gaz de 0.01 à 100 m/s. L'écoulement stratifié lisse n'est jamais observé. L'écoulement stratifié à vagues est observé pour les diamètres 2 et 3 mm, mais pas pour 1 mm. Bien que le diamètre des tubes soit faible, la tension de surface est elle aussi très faible de sorte que le critère (1.1) de Suo & Griffith (1964) n'est pas satisfait. On se trouve ici dans un cas où la stratification est possible.

Les travaux expérimentaux d'Aussillous & Quéré (2000) ont revisité les travaux pionniers de Taylor (1961) et de Bretherton (1961) sur le mouvement de poches isolées poussées par un liquide en tube millimétrique ( $0,84 < d_H < 2,92$ ). Des liquides à faible tension de surface sont utilisés : huiles de silicones, ethanol, heptane et decane. Les mesures ont permis de compléter les travaux de Taylor (1961) en précisant l'évolution de l'épaisseur de film ( $h/d_H = 0,67Ca^{2/3}/(1+3,35Ca^{2/3})$ ).

Pour des canaux et des tubes de taille millimétrique et pour de l'eau et de l'azote, Morgante & Fabre (2005) présentent des cartes de configuration pour des vitesses superficielles dans la gamme



de celles d'une pile à combustible.  $J_G$  varie de 1 à 1000 cm/s et  $J_L$  de 0,1 à 100 mm/s. Deux configurations sont observées : un écoulement intermittent caractérisé par la présence de poches de gaz séparées par des bouchons de liquide, et un écoulement à phases séparées caractérisé par la continuité de l'interface entre le gaz et le liquide.

Très récemment, [Duclaux et al. \(2006\)](#) ont considéré l'écoulement annulaire en tube de diamètre  $0,3 < d_H < 3\text{mm}$  et en régime très visqueux ( $Re_{LS} \ll 1$ ). Les fluides utilisés sont des huiles de silicone et du glycerol. Cette étude a porté sur la stabilité du régime annulaire en montrant l'effet de la gravité sur la transition annulaire/stratifié ce qui a permis de proposer un critère de transition basé sur le nombre d'Eötvös sur lequel nous reviendrons dans la partie suivante.

Le tableau (1.2) est un résumé des études citées ci-dessus (cas horizontal) dans les conditions caractéristiques d'un canal de pile à combustible introduites en début de section.

### En tube ou canal vertical

[Galbiati & Andreini \(1992a\)](#) étudient les écoulements eau/air et eau distillée/air en tube vertical de diamètre 1.3, 2.2 et 3.1 mm. Ils proposent un modèle de transition entre écoulement intermittent et annulaire en tube vertical.

[Zhao & Bi \(2001\)](#) étudient les écoulements eau-air verticaux en canal de section triangulaire de diamètres hydrauliques 0.866, 1.443 et 2.886 mm. Les régimes présents dans des tubes circulaires verticaux de large diamètre (à bulles dispersées, intermittent, bouillonnant, annulaire) se retrouvent sauf le *dispersed bubbly flow* pour 0.866 mm. Vitesse superficielle du liquide : 0.08 à 10 m/s et du gaz : 0.1 à 100 m/s.

[Wölk et al. \(2000\)](#) ont effectué des expériences avec de l'eau et de l'air en tube vertical pour différentes sections. Une section est circulaire et quatre autres sont carrée, rectangulaire, en losange et triangulaire. Toutes ces sections ont un diamètre hydraulique proche de 6 mm. Les vitesses superficielles du liquide sont : 0.36 à 4.0 m/s et du gaz : 0.15 à 5.0 m.s. Trois régimes sont observés : intermittent et à bulles dispersées. L'écoulement annulaire est favorisé vis à vis de l'intermittent de manière croissante par les sections carrée et rectangulaire, ensuite en losange, puis triangulaire.

### Influence de la mouillabilité des parois

[Barajas & Panton \(1993\)](#) font porter leur étude sur l'influence des propriétés de mouillabilité du matériau utilisé. Ils étudient les écoulements diphasiques eau/air en tube horizontal de diamètre 1.6 mm. Différents matériaux (pyrex, polyéthylène, polyuréthane et FEP une résine

fluoropolymère) pour le tube ont été utilisés de manière à avoir différents angles de contact statique. Cette étude sera présentée en détail plus bas.

Source	Fluides	Caractéristiques	$U_{SL}(m/s)$	$U_{SG}(m/s)$	Régimes observés
Damianides & Westwater (1988)	eau/air	tube circulaire. $d : 1 \text{ à } 5 \text{ mm}$	0.08 à 10	0.03 à 100	1. <i>plug, slug flow</i> 2. <i>annular</i> 3. <i>bubbly, dispersed flow</i>
Barajas & Panton (1993)	eau/air	tube circulaire $d = 1.6 \text{ mm}$ - Pyrex : $\theta = 34$ , polyéthylène : $\theta = 61$ , polyuréthane : $\theta = 74$ , FEP : $\theta = 106$	0.003 à 2	0.1 à 100	1. <i>wavy (34°) ou rivulet (61, 74, 106°) flow</i> 2. <i>plug-slug flow</i> 3. <i>annular et annular-dispersed flow</i> 4. <i>bubble flow</i>
Triplett <i>et al.</i> (1999)	eau/air	tube circulaire : $d = 1.1$ et $1.45 \text{ mm}$ - tube semi-triangular : $d_H = 1.09$ et $1.49 \text{ mm}$	0.02 à 8	0.08 à 80	1. <i>bubbly flow</i> 2. <i>slug flow</i> 3. <i>churn flow</i> 4. <i>slug-annular flow</i> 5. <i>annular flow</i>
Coleman & Garmella (1999)	eau/air	tube circulaire en pyrex $d = 1.3, 1.75, 2.60$ et $5.50 \text{ mm}$ - canal rectangulaire $d_H = 5.36 \text{ mm}$	0.01 à 10	0.1 à 100	1. <i>stratified flow : smooth and wavy</i> 2. <i>intermittent flow : plug and slug</i> 3. <i>annular flow : wavy annular and annular</i> 4. <i>dispersed flow : bubble and dispersed</i>
Yang & Shieh (2001)	eau/air fréon R134A	tube circulaire en pyrex, $d = 1, 2, \text{ et } 3 \text{ mm}$	0.005 à 5	0.01 à 100	1. <i>wavy stratified flow</i> 2. <i>plug and slug flow</i> 3. <i>annular flow</i> 4. <i>bubble and dispersed flow</i>
Morgante & Fabre (2005)	eau/azote	tube circulaire en verre, $d = 1 \text{ mm}$ - Canal carré Plexiglas $1 \times 1 \text{ mm}^2$ et $2 \times 2 \text{ mm}^2$	0.0001 à 0,1	0.01 à 10	1. <i>Separated flow : smooth and wavy</i> 2. <i>Intermittent flow</i>

TAB. 1.2 – Résumé des principales études expérimentales en mini-tubes horizontaux et avec différentes géométries de section (circulaire, "semi-triangular" et rectangulaire)

### 1.3.4 Transition entre régimes

Nous détaillons ici les modèles de transition, issus de la littérature, entre régimes d'écoulement. Comme les trois régimes observés par [Marchand \(1998\)](#) dans une pile à combustible sont le régime stratifié, le régime intermittent et le régime annulaire, nous nous restreignons aux transitions entre ces trois régimes et à la transition stratifié-non stratifié.

#### Existence de l'écoulement stratifié

Le critère de non existence de l'écoulement stratifié proposé par [Suo & Griffith \(1964\)](#) donné par la relation (1.1) peut être reformulé comme une comparaison entre deux longueurs caractéristiques : le diamètre hydraulique du canal  $d_H$  et la longueur capillaire  $l_c = \sqrt{\frac{\sigma}{\Delta\rho g}}$ . Il peut donc s'écrire :

$$d_H < 0.3 l_c$$

Un autre critère est donné par [Brauner & Moalem-Maron \(1992\)](#) à partir de l'analyse de l'instabilité de Rayleigh-Taylor :

$$Eo = \frac{\Delta\rho g d_H^2}{\sigma} < (2\pi)^2 \quad (1.2)$$

relation qui peut aussi s'écrire en fonction de la longueur capillaire :

$$d_H < 6,3 l_c \quad (1.3)$$

La relation de [Brauner & Maron](#) suggère l'absence d'écoulement stratifié pour des diamètres beaucoup plus grands que celle de [Suo & Griffith \(1964\)](#). Cependant, [Suo & Griffith \(1964\)](#), et d'autres études ([Damianides & Westwater \(1988\)](#), [Fukano & Kariyasaki 1993...](#)) ont confirmé que dans ces conditions d'écoulement ( $T = 20C$ ,  $P = 1 \text{ bar}$ ), il n'y a pas de régime stratifié pour des diamètres inférieurs à 1 mm, ce qui correspond davantage au critère de [Suo & Griffith \(1964\)](#) qu'à celui de [Brauner & Moalem-Maron \(1992\)](#). En effet, à  $T = 20C$  pour de l'eau et de l'air,  $l_c \approx 2.7 \text{ mm}$ . Le critère de [Suo & Griffith \(1964\)](#) donne :  $d_H < 0.9 \text{ mm}$ , ce qui est cohérent avec les observations expérimentales.

Toutefois il est possible de réconcilier les critères de [Suo & Griffith \(1964\)](#) et de [Brauner & Maron \(1992\)](#) à partir des résultats obtenus en condition statique par [Turnau & Fabre \(2005\)](#). Leurs expériences et les modèles de stabilité montrent en effet qu'il existe deux transitions différentes selon que l'on considère le passage de la configuration stratifiée à la configuration à poches ou l'inverse. Il y a de fortes chances que le phénomène d'hystérésis observé par ces auteurs existe aussi en écoulement.

#### Transition écoulements stratifié / intermittent

[Taitel & Dukler \(1976\)](#) ont développé, pour les tubes en grand diamètre, un modèle de

transition basé sur l'instabilité de Kelvin-Helmholtz, donc sur une compétition gravité-inertie. Ce modèle ne s'applique plus en tube de faible diamètre : la tension de surface n'est plus négligeable. Barnea *et al.* (1983) proposent un modèle pour les tubes circulaires de faible diamètre. L'idée est que la tension de surface n'est plus une force stabilisante, comme la gravité, qui favorise la stratification. La compétition gravité-capillarité s'exprime ici par le critère :

$$d - h_L \leq \frac{\pi}{4} \sqrt{\frac{\sigma}{\rho_L g (1 - \frac{\pi}{4})}} \quad (1.4)$$

où  $h_L$  est la hauteur de liquide dans l'écoulement stratifié et  $d$  le diamètre du tube. Barnea *et al.* (1983) indique que lorsque le diamètre  $d$  du tube est suffisamment petit, cette relation devient :

$$h_L \geq (1 - \frac{\pi}{4}) d \quad (1.5)$$

### Transition écoulement stratifié / annulaire

Galbiati & Andreini (1992b) proposent un modèle de transition entre l'écoulement stratifié et l'écoulement annulaire pour des tubes de section circulaire, modifié par Marchand (1998) pour des sections carrées. Ce modèle est une modification du critère de Taitel & Dukler (1976), basée sur l'instabilité de Kelvin-Helmholtz, dans lequel la tension de surface est introduite. Il s'agit donc de décrire la compétition capillarité+gravité/inertie.

### Transition écoulement intermittent / annulaire

Akbar *et al.* (2003) considèrent des tubes circulaires ou presque circulaires pour le cas où  $d_H \lesssim 1 \text{ mm}$ . Les effets de tension de surface dominent les effets de gravité : le régime stratifié ne s'observe plus. Les régimes observés peuvent être classés selon quatre régions, présentées sur la carte de configuration (1.7) :

- Une région dominée par la tension de surface, regroupant le régime intermittent et le *bubbly flow*.
- Une région de transition entre le régime intermittent et le régime annulaire.
- Une zone 1 dominée par l'inertie (du gaz) : le régime annulaire.
- Une zone 2 dominée par l'inertie : le régime dispersé.

Les transitions proposées sont :

1. Pour la zone dominée par la tension de surface :

$$\begin{aligned} \text{Pour } We_{LS} \leq 3.0 : We_{GS} &\leq 0.11 We_{LS}^{0.315} \\ \text{Pour } We_{LS} > 3.0 : We_{GS} &\leq 1.0 \end{aligned} \quad (1.6)$$

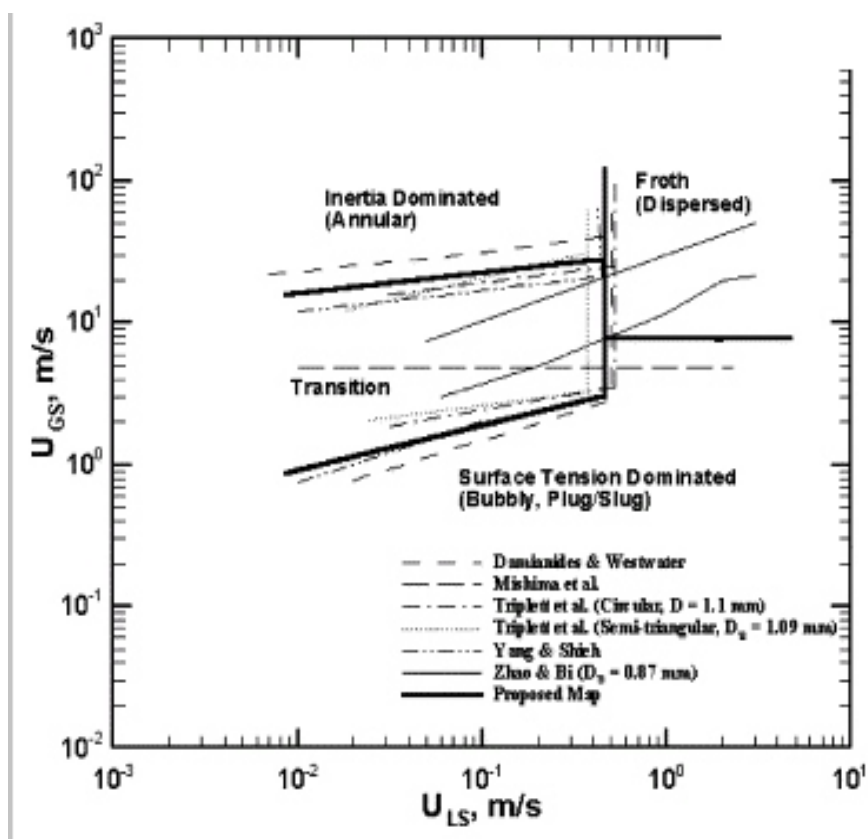


FIG. 1.7 – Carte de configuration pour des tubes circulaires et presque circulaires avec  $d_H \lesssim 1 \text{ mm}$ , d'après Akbar *et al.* (2003)

2. Pour la zone de l'annular flow (zone 1) :

$$We_{LS} \leq 3.0 \text{ et } We_{GS} \geq 11.0 We_{LS}^{0.14} \quad (1.7)$$

3. Pour la zone dispersed flow (zone 2) :

$$We_{LS} > 3.0 \text{ et } We_{GS} > 1.0 \quad (1.8)$$

Ce que décrit Akbar *et al.* (2003) est une compétition inertie-capillarité. Si l'on considère l'écoulement annulaire, la tension de surface tend à minimiser l'aire interfaciale, donc à rompre l'interface pour former des poches de gaz. L'inertie du gaz tend à s'y opposer et conserver le régime annulaire.

Duclaux *et al.* (2006) montrent en régime très visqueux en tube circulaire ( $Re_{LS} \ll 1$ ) que l'instabilité du régime annulaire en tube apparaît si l'épaisseur du film mouillant la paroi vérifie :

$$\frac{h}{d_H} > \frac{0,3 d_H^2}{4 l_c^2} \quad (1.9)$$

où  $l_c = \sqrt{\sigma/\rho g}$  est la longueur capillaire. Les visualisations réalisées mettent en évidence le drainage du film liquide induit par la gravité et la dissymétrie induite sur l'épaisseur du film.

### Transition écoulement intermittent/écoulement séparé en canal

En canal il est difficile de réellement préciser expérimentalement la géométrie d'un écoulement à phases séparées. Comme nous le présenterons dans le chapitre 8, l'écoulement peut être soit annulaire, les parois étant alors complètement mouillées, ou soit mouillant partiellement les parois, le liquide étant alors piégé dans les arêtes du canal. [Morgante & Fabre \(2005\)](#) ont présenté des cartes de configuration montrant la transition entre le régime à phases séparées et le régime intermittent. Compte tenu de leurs conditions d'écoulement, ils montrent par analyse des ordres de grandeurs des différents effets impliqués dans le canal (inertie, viscosité, tension de surface, gravité) que le nombre pertinent pour décrire la transition est le nombre de Weber qui dans les expériences réalisées par ces auteurs varie entre  $10^{-3}$  et  $10^3$ . La transition est alors donnée par

$$\rho_L (J_L + J_G)^2 d_H \sim \sigma$$

. Un exemple de carte de configuration est reportée sur la figure 1.8 avec les transitions observées pour trois nombres de Weber différents.

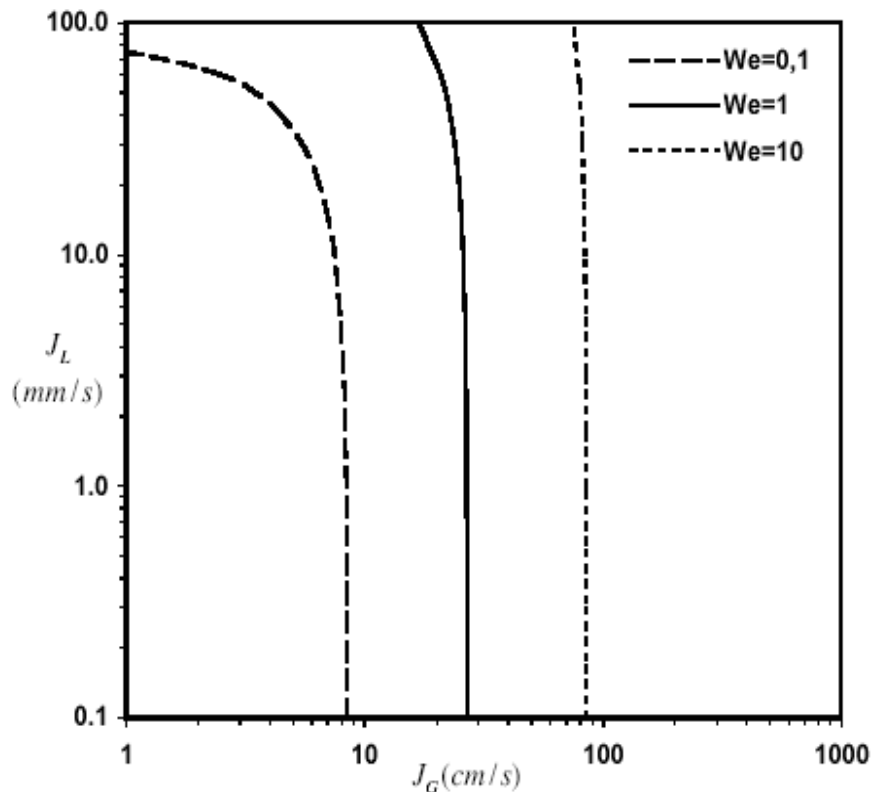


FIG. 1.8 – Transition entre l'écoulement intermittent (zone de gauche) et l'écoulement à phases séparées (zone de droite) pour  $d_H = 1mm$ , d'après [Morgante & Fabre \(2005\)](#)

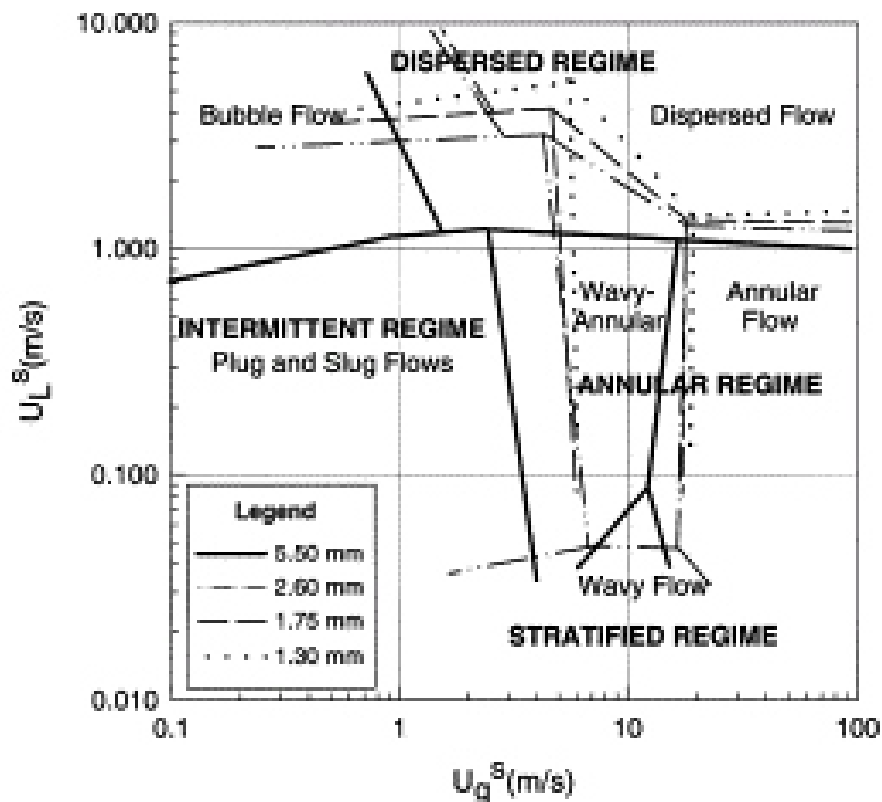


FIG. 1.9 – Carte de configuration pour  $d_H$  de 1.30 à 5.50 mm d'après Coleman & Garimella (1999)

### 1.3.5 Bilan de l'influence des différents paramètres

#### Diamètre du tube et tension de surface

Sur les transitions entre régimes d'écoulement, le diamètre du tube est une donnée essentielle. En effet, un petit diamètre augmente l'importance de la tension de surface vis à vis des autres forces (inertie, gravité...). L'effet de la tension de surface est de minimiser l'aire interfaciale, donc de privilégier la transition vers l'écoulement à poches et bouchons sur l'écoulement annulaire : figure (1.9).

Concernant la transition stratifié - non stratifié, les expériences montrent que, pour de l'eau et de l'air à température ambiante et à pression atmosphérique, elle intervient pour  $1 < d_H < 2 \text{ mm}$ . Pour  $d_H < 1 \text{ mm}$ , la tension de surface domine totalement les effets de gravité : le régime stratifié n'est plus possible, même pour des faibles débits de gaz et de liquide. Pour  $2 \text{ mm} < d_H$ , le régime stratifié peut exister pour des débits de gaz et de liquide faibles.

En fait, nous avons vu qu'il s'agit de comparer les deux longueurs caractéristiques : le dia-



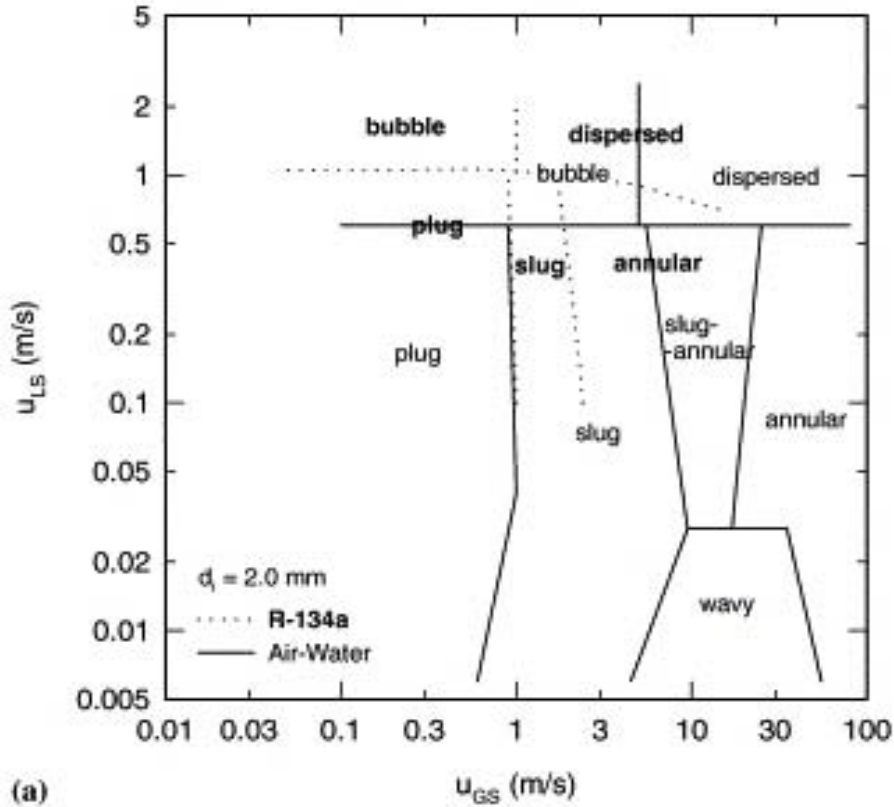


FIG. 1.10 – Carte de configuration pour l’eau-air et le R134a-vapeur dans un tube de diamètre de 2 mm d’après [Yang & Shieh \(2001\)](#)

mètre hydraulique et la longueur capillaire. La température peut faire varier modérément la transition. En effet, la tension de surface diminue quand la température augmente, donc également la longueur capillaire (A  $P = 1\text{bar}$ , La longueur capillaire est  $l_c = 2.7\text{mm}$  pour  $T = 20^\circ\text{C}$  et  $l_c = 2.55\text{mm}$  à  $T = 80^\circ\text{C}$ ).

L’importance de la tension de surface est directement liée au diamètre hydraulique du tube. [Yang & Shieh \(2001\)](#) ont comparé les transitions dans le système eau-air avec les transitions obtenues pour le système R134a-vapeur : figure (1.10). Les longueurs capillaires sont à  $T \simeq 30^\circ\text{C}$   $l_c = 0.8\text{mm}$  pour le R134a et  $l_c = 2.7\text{mm}$  pour l’eau-air. Ceci explique les résultats de [Yang & Shieh \(2001\)](#) : l’augmentation de la tension de surface a les mêmes conséquences sur les transitions que la diminution du diamètre du tube. C’est-à-dire que pour un même diamètre, l’écoulement intermittent apparaît plus tôt lorsque la tension de surface est plus importante.

## Géométrie du tube

L'influence de la géométrie de la section sur les régimes est peu comprise. Le diamètre hydraulique et le rapport d'aspect font varier l'influence de la tension de surface, de la gravité, de l'inertie et de la viscosité. Coleman & Garimella (1999) ont comparé des tubes ronds et des canaux rectangulaires pour le même diamètre hydraulique. Cependant, des matériaux de mouillabilité différente ont été utilisés, sans que cette différence ne soit prise en compte. Les tubes ronds sont en Pyrex, que l'eau mouille, alors que les canaux sont en plastique, qui est plutôt non-mouillant. La transition intermittent-annulaire a lieu pour des vitesses superficielles de gaz plus faibles dans un canal rectangulaire en plastique que pour les tubes ronds en Pyrex : figure (1.11). De plus le régime stratifié existe pour des vitesses superficielles de gaz plus faibles que pour les tubes. Ainsi, cette étude montre que le domaine d'existence du régime annulaire est plus important pour les sections rectangulaires que pour les tubes ronds. Ceci est confirmé par l'étude de Wölk *et al.* (2000) effectuée en écoulement vertical avec des sections de géométries différentes (rond, carrée, rectangulaire, losange et triangulaire).

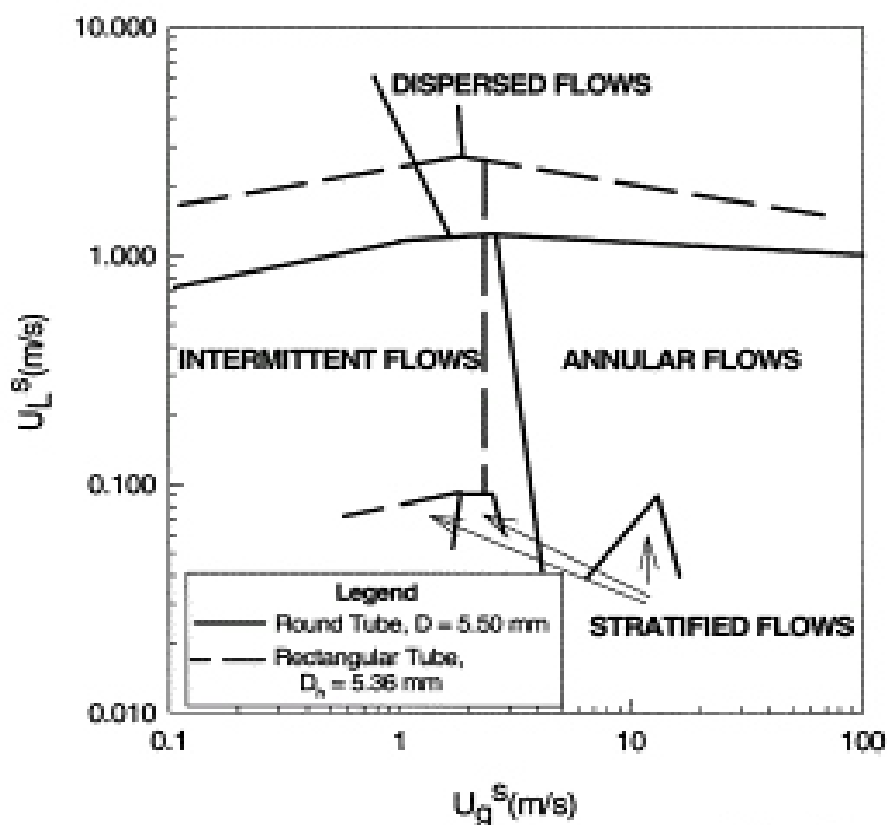


FIG. 1.11 – Carte de configuration pour un tube rond en Pyrex  $d_H = 5.50$  mm et un canal rectangulaire en plastique pour  $d_H = 5.36$  mm et un rapport d'aspect  $\alpha = 0.725$  d'après Coleman & Garimella (1999)

Triplett *et al.* (1999) utilisent des canaux horizontaux de section semi-triangulaire (un des sommets est arrondi) de diamètre hydraulique 1.09 mm et 1.49 mm. L'écoulement stratifié n'est pas observé pour ces sections, ni pour les sections circulaires de même diamètre hydraulique. Ce qui peut être éventuellement expliqué par le fait que la vitesse superficielle minimale de liquide est de 0.03 m/s, vitesse trop importante pour ces faibles diamètres.

### La mouillabilité des parois

Barajas & Panton (1993) font l'étude d'écoulements diphasiques eau/air en tube horizontal de diamètre 1.6 mm. Différents matériaux (pyrex, polyéthylène, polyuréthane et un fluoropolymère) pour le tube ont été utilisés de manière à avoir différents angles de contact statiques :  $34^\circ$ ,  $61^\circ$ ,  $74^\circ$  (tous trois partiellement mouillants) et  $106^\circ$  (partiellement non-mouillant). La présence d'hystérésis de l'angle de contact n'est pas mentionnée. La vitesse superficielle pour le liquide va de 0.003 à 2 m/s et pour le gaz 0.1 à 100 m/s. Les régimes observés sont présentés sur la figure (1.12). Deux nouveaux régimes apparaissent : écoulement ruissellement et à multiple ruissellement. Ils sont caractérisés par des filets de liquide qui sillonnent le long de la paroi.

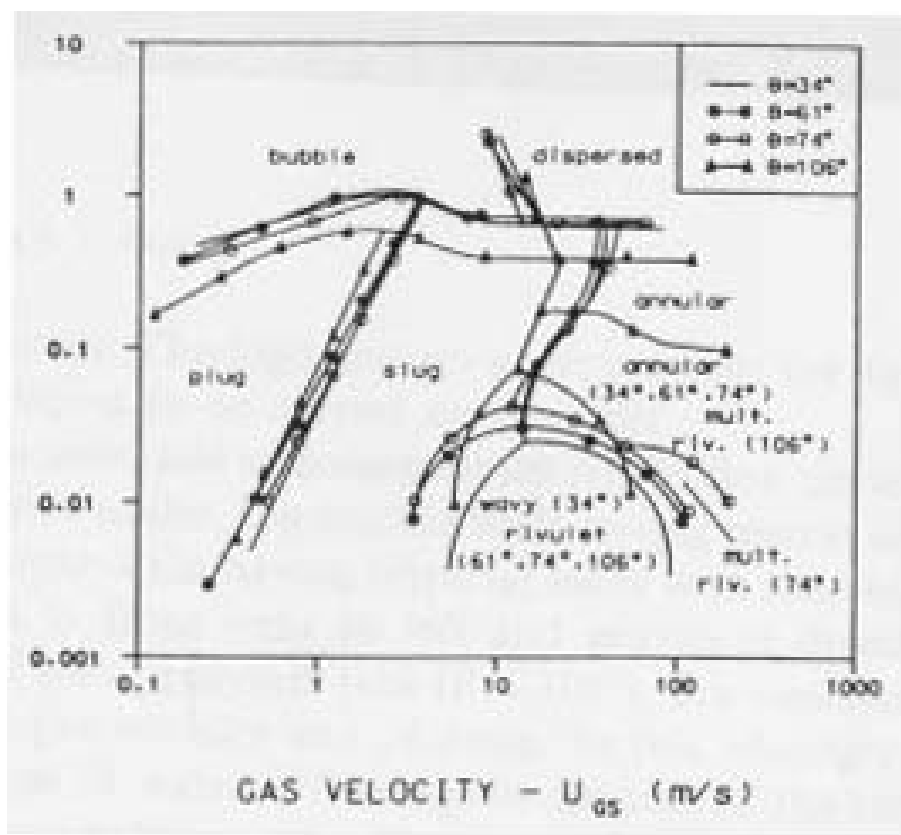


FIG. 1.12 – Carte de configuration pour des mouillabilités différentes d'après Barajas & Panton (1993)

Ils observent que l'écoulement stratifié à vague existe pour  $34^\circ$  mais devient un écoulement ruissellant pour des angles de contact supérieurs. A partir de  $74^\circ$  et pour des débits de gaz importants, plusieurs filets apparaissent : l'écoulement ruissellant devient un écoulement à multiple ruissellement. Concernant la transition intermittent/annulaire, elle ne change pas pour les 3 angles mouillants ( $34^\circ$ ,  $61^\circ$ ,  $74^\circ$ ), mais pour l'angle non-mouillant  $106^\circ$ , la transition change et a lieu pour des débits de gaz plus faibles que pour les autres angles. Concernant la transition stratifié-intermittent ou stratifié-annulaire, l'angle a une influence sur la zone de transition : le débit de liquide doit être plus important pour provoquer la transition.

L'étude expérimentale et théorique de [Turnau & Fabre \(2005\)](#) permet de quantifier l'influence de l'angle de mouillage sur les transitions de configuration dans des situations statiques. Les résultats ne sont pas directement exploitables pour les cas d'écoulement mais la méthode devrait être étendue et fournir ainsi le cadre théorique à la prédiction des transitions.

## 1.4 Écoulements diphasiques en minicanaux de pile à combustible

Très peu d'études disponibles portent sur les écoulements diphasiques en condition de fonctionnement d'une pile à combustible. Cette partie expose les principaux résultats de la thèse de [Marchand \(1998\)](#) effectuée au CEA de Grenoble.

### 1.4.1 Présentation

La thèse de [Marchand \(1998\)](#) porte sur l'étude de la gestion de l'eau dans une pile à combustible et surtout sur l'impact des régimes d'écoulements diphasiques sur la tension électrique délivrée par la pile.

[Marchand \(1998\)](#) a utilisé des canaux de section carrée de diamètre hydraulique  $d_H = 1.5\text{mm}$ . Ces canaux sont en acier 316L, et l'électrode est en graphite. Il y a deux canaux côté anode et quatre canaux côté cathode. La pression est  $P = 4\text{bar}$  et la température de la cellule est  $T = 80^\circ\text{C}$ . Les gaz sont préalablement humidifiés à la température de la cellule. La vitesse superficielle du liquide est  $U_{SL} = 0.0001$  à  $0.01\text{m/s}$  et du gaz  $U_{SG} = 0.01$  à  $10\text{m/s}$ .

Pour la visualisation des écoulements, des hublots en pyrex ont été placés permettant de distinguer le type d'écoulement. Donc, dans la zone de visualisation, le canal a un côté en graphite, plutôt non-mouillant (l'électrode), deux côtés en acier, plutôt mouillants (la plaque bipolaire) et un côté en Pyrex plutôt mouillant. Hors de cette zone, le canal a trois côtés en acier. L'acier et le Pyrex n'ont pas une mouillabilité identique, ce qui peut éventuellement influencer l'écoulement. Cette différence de mouillabilité n'a pas été évaluée par [Marchand \(1998\)](#), qui suppose que cela n'a pas d'influence sur le régime.

### 1.4.2 Écoulements diphasiques observés

#### Régimes d'écoulements

Deux fonctionnements sont possibles qui dépendent de la manière d'introduire le comburant (oxygène). Il peut être injecté sous forme pure (fonctionnement  $H_2/O_2$ ) ou présent dans l'air (fonctionnement  $H_2/\text{air}$ ). En fonctionnement  $H_2/O_2$ , deux régimes sont observés côté anode et côté cathode : le *slug flow* et un écoulement doublement stratifié. En fonctionnement  $H_2/\text{air}$ , le *slug flow* et l'écoulement doublement stratifié sont observés à l'anode, alors que seul l'écoulement doublement stratifié est observé à la cathode.

Les régimes d'écoulement observés sur une partie horizontale du canal sont reportés sur la figure 1.13. L'écoulement doublement stratifié correspond à deux films de liquide présents l'un à la face supérieure du canal, l'autre à la face inférieure, c'est-à-dire sur les côtés en acier. Des gouttelettes visibles sur le hublot prouvent que l'écoulement n'est pas annulaire. Marchand (1998) propose une explication concernant l'existence de cette double stratification. Chaque canal est horizontal et comporte des coudes à  $180^\circ$  pour que le canal puisse parcourir toute la surface de la cellule. Un film de liquide initialement contre la face inférieure du canal resterait contre cette même face dans le coude qui devient ensuite la face supérieure. Un film contre la face inférieure se formerait conjointement. Cela pourrait expliquer la présence de deux films de liquide dans le canal.

#### Performance de la pile

Le lien entre les différents régimes d'écoulement et le fonctionnement de la pile a été étudié. L'écoulement annulaire a également été obtenu pour des conditions opératoires différentes, dans le seul but d'observer son effet sur le fonctionnement de la pile. Marchand (1998) montre que l'écoulement permettant le meilleur fonctionnement est l'écoulement doublement stratifié. Les écoulements annulaires et intermittents conduisent à de faibles valeurs de tension produite. Ceci s'explique par la lenteur de diffusion du gaz réactif au travers du film de liquide présent sur la face de l'électrode. De plus, l'écoulement intermittent produit également une valeur de tension fluctuante due à la succession de poches de gaz et de bouchons de liquide. L'amplitude de ces fluctuations est de l'ordre de  $50\text{ mV}$ .

### 1.4.3 Influence de différents paramètres géométriques et physiques

Marchand (1998) étudie l'influence de paramètres géométriques ou physiques sur les transitions entre régimes d'écoulement en utilisant les deux relations (1.10) :  $U_{LS} = f(j)$  et  $U_{GS} = f(j, \lambda)$ , où  $j$  est la densité de courant ( $A.cm^{-2}$ ) et  $\lambda$  la stoechiométrie du gaz. Ces relations

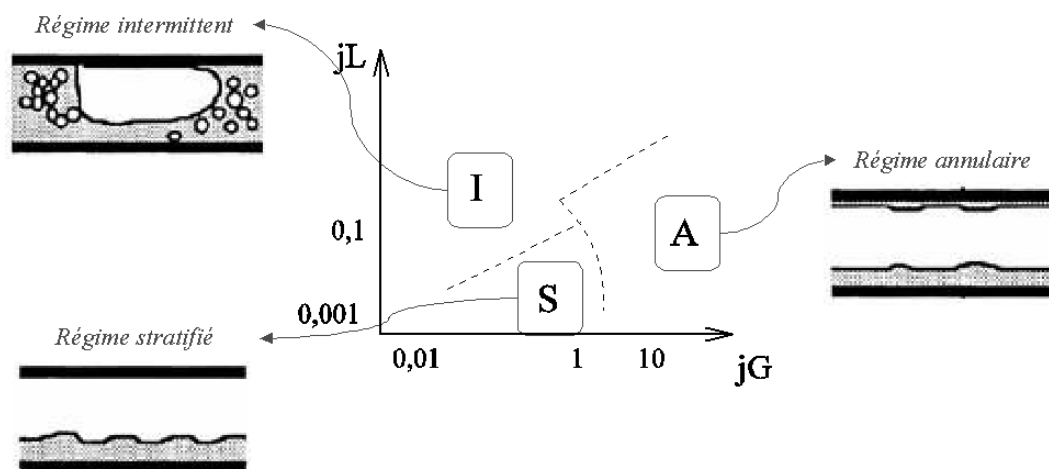


FIG. 1.13 – Ecoulements dans une partie horizontale du canal observés par Marchand (1998). A noter que Marchand (1998) fait état d'écoulement doublement stratifié.

données par Marchand (1998) permettent de tracer le diagramme des transitions en fonction de  $j$  et  $\lambda$  plus utilisé en électrochimie que celui en fonction de  $U_{LS}$  et  $U_{GS}$ .

$$\begin{aligned}
 U_{LS} &= \frac{jS M_{H_2O}}{193000 \rho_L n_c d_H^2} \left( Q_0 + \frac{1}{Q_1} \frac{x_{sat}}{1 - x_{sat}} \right) \\
 U_{GS} &= \frac{jS RT}{96500 Q_2 P n_c d_H^2} (Q_3 \lambda - 1) \frac{1}{1 - x_{sat}}
 \end{aligned} \tag{1.10}$$

où  $d_H$  est le diamètre hydraulique du canal,  $M_{H_2O}$  la masse molaire de l'eau,  $n_c$  le nombre de canaux,  $Q_{0,1,2,3}$  des constantes dépendant du gaz et de la membrane utilisés (Marchand (1998)),  $S$  la surface d'électrode utilisée,  $T$  la température de la cellule,  $R$  la constante des gaz parfaits,  $P$  la pression du gaz, et  $U_{LS}$  et  $U_{GS}$  les vitesses superficielles du liquide et du gaz. Précisons ce que signifie le coefficient stoechiométrique  $\lambda$ . Pour que la réaction-bilan de la pile ait lieu, il faut fournir 2 moles de  $H_2$  et 1 mole de  $O_2$  pour former 4 moles de  $H_2O$ .  $\lambda$  correspond au coefficient stoechiométrique de l'oxygène à fournir (ici  $\lambda = 1$ ). Cependant, il est important de fournir plus d'oxygène que nécessaire en raison de pertes diverses. C'est pourquoi  $\lambda$  varie le plus souvent entre 1,2 et 2,0. Faire varier ce coefficient revient implicitement à faire varier le débit de gaz en entrée (air ou oxygène pur).

Ces deux relations (1.10) proposées par Marchand (1998) peuvent être utilisées pour étudier

l'influence des paramètres physiques ou géométriques sur les transitions entre régimes d'écoulement. Au vu de l'influence du type de régime sur le fonctionnement de la pile, l'objectif de cette démarche est de savoir ce qui favorise l'écoulement doublement stratifié aux dépens des autres régimes. Il s'agit d'une étude de sensibilité aux paramètres, faite à partir des relations (1.10).

### Taille des canaux

Marchand (1998) fait varier  $d_H$  dans les relations (1.10) :  $d_H = 1$  mm, 1.5 mm et 2.5 mm. Elle montre que le diamètre hydraulique influe uniquement sur la transition écoulement stratifié-annulaire. Le domaine d'existence du régime stratifié est diminué au profit du régime annulaire lorsque  $d_H$  diminue. De plus, il n'a pas d'influence sur la transition intermittent-stratifié.

Cette conclusion est surprenante au vu des résultats des publications présentées plus haut. Nous avons vu que la diminution du diamètre hydraulique augmente le domaine d'existence du régime intermittent au détriment des régimes stratifié et annulaire, à cause de la prédominance de la tension de surface qui minimise l'aire interfaciale.

### Nombre des canaux

Marchand (1998) fait varier maintenant  $n_c$  de 2 à 10 canaux. Elle montre que le nombre de canaux n'a pas d'influence sur la transition stratifié-intermittent, mais modifie la zone de transition stratifié-annulaire. Plus le nombre de canaux est important, plus le domaine d'existence du régime stratifié augmente au détriment du régime annulaire.

### Stoechiométrie

La stoechiométrie du gaz  $\lambda$  liée au débit de gaz en entrée du canal, varie alors que tous les autres paramètres restent fixés.  $\lambda$  varie de 1,2 à 2,0. Ce paramètre influe sur la vitesse superficielle du gaz mais peu sur celle du liquide. Le résultat montre que pour  $\lambda = 1,2$ , l'écoulement est intermittent. Lorsqu'il augmente,  $U_{LS} = \text{cte}$  alors que  $U_{GS}$  augmente. Pour  $\lambda = 2,0$ , la transition intermittent / stratifié a eu lieu et l'écoulement est stratifié.

### Température

L'influence de la température est étudiée avec  $T = 50^\circ\text{C}$  et  $T = 80^\circ\text{C}$ . La transition stratifié-annulaire n'est pas modifiée alors que la transition stratifié-intermittent est déplacée au profit du régime stratifié, lorsque la température augmente.

Ce résultat est intuitivement cohérent. Une augmentation de température diminue la tension de surface. Ainsi, la longueur capillaire est plus courte, ce qui diminue la prédominance de

la tension de surface vis à vis de la gravité. Autrement dit, le régime stratifié a son domaine d'existence plus important.

## Pression

Enfin, [Marchand \(1998\)](#) fait varier la pression :  $P = 1.5bar$  et  $P = 4bar$ . Elle montre qu'en augmentant la pression, les deux transitions, intermittent-stratifié et stratifié-annulaire sont modifiées. Le domaine d'existence du régime intermittent augmente au détriment du régime stratifié, et le domaine d'existence du stratifié augmente au détriment du régime annulaire.

### 1.4.4 Commentaires

Les régimes observés par [Marchand \(1998\)](#), dans les conditions opérationnelles de la pile, sont les régimes intermittent et doublement stratifié. Le régime annulaire est possible pour des débits de gaz plus importants. L'écoulement doublement stratifié qui est à favoriser pour obtenir un bon rendement de la pile est en fait surprenant. Le terme « doublement stratifié » porte en lui-même un paradoxe. La stratification est un résultat de la prédominance de la gravité sur la tension de surface et sur l'inertie, alors que la présence d'un film à la face supérieure du canal montre une prédominance de la tension de surface ou de l'inertie sur la gravité. Ainsi, considérer uniquement les compétitions entre ces différentes forces ne permet pas de conclure sur la formation de ce double film. Il faut prendre en compte d'autres éléments, comme la mouillabilité des parois, la géométrie de la section ou encore la présence de coudes au sein du canal.

Le mini-canal d'une pile à combustible cumule les zones d'ombre dans la connaissance des écoulements diphasiques en mini-canaux. L'influence d'une géométrie de section carré est peu connue et concernant l'influence de la mouillabilité de la paroi, seule une étude expérimentale a été faite ([Barajas & Panton \(1993\)](#)) qui en montre l'importance. Or ici, le canal a trois faces mouillantes et une face non mouillante. Ce dernier aspect a un rôle essentiel sur le régime d'écoulement obtenu et notamment comme nous le montrerons dans ce travail sur le piégeage de l'eau dans les arêtes du canal. En effet, compte tenu des contrastes de mouillabilité des parois il est plus envisageable de rencontrer les configurations reportées sur la figure 1.14 car il est très difficile pour le liquide venir mouiller la paroi et il préférera rester piégé dans les arêtes du canal.

## 1.5 Position du problème

Nous souhaitons dans cette section considérer certaines particularités d'un écoulement en canal de pile à combustible. Nous précisons également les ordres de grandeurs des principales grandeurs et nombres adimensionnels.



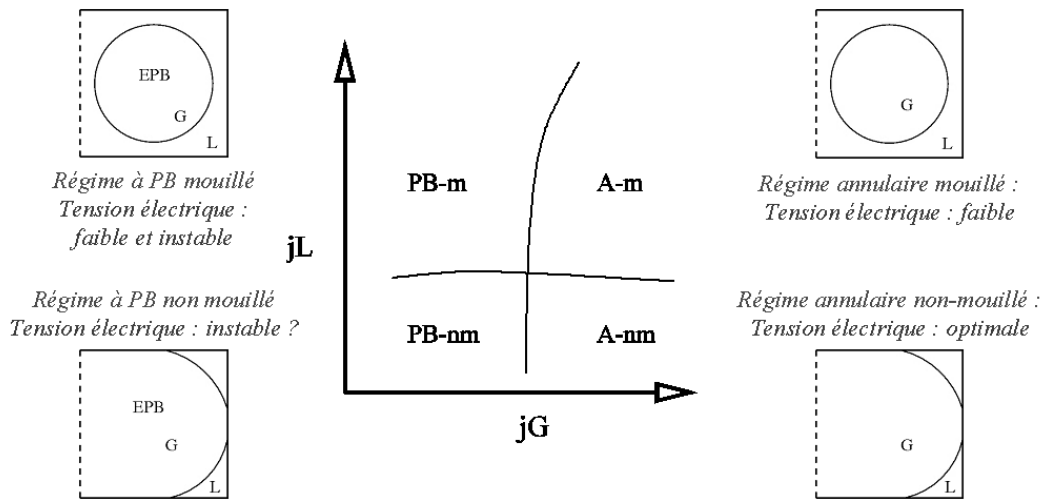


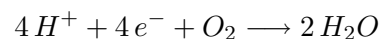
FIG. 1.14 – Hypothèse de types d’écoulement dans une partie horizontale d’un canal de pile. La paroi en pointillé à gauche correspond à la GDL. *PB* signifie poche bouchon.

### 1.5.1 Production d’eau et alimentation en gaz

La quantité d’eau produite et évacuée est directement liée aux caractéristiques techniques de fonctionnement de la pile, c’est-à-dire la tension moyenne  $V_c$  d’une cellule, le courant produit  $I$  et le coefficient stoechiométrique  $\lambda$  d’air introduit. De plus, le gaz en entrée est plus ou moins humide, voire saturé. Il faut pouvoir en tenir compte. Les relations ci-dessous sont établies à partir de [Larminie & Dicks \(1999\)](#).

#### Production d’eau

A la cathode, la réaction chimique est :



Ainsi, 4 moles d’électrons donnent 2 moles d’eau. Le courant électrique  $I$  peut s’écrire :

$$I = 2F \dot{n}_{H_2O}$$

où  $F = 96500C/mol$  est le nombre de Faraday et  $\dot{n}_{H_2O}$  le débit molaire d’eau.

La puissance électrique d'une cellule est :

$$P_e = V_c \cdot I = V_c \cdot S_m \cdot j$$

où  $V_c$  est la tension moyenne,  $S_m$  la surface de la membrane et  $j$  la densité de courant.

En prenant  $j \simeq 0.45 A/cm^2$ , on obtient le débit molaire d'eau  $\dot{n}_{H_2O}$  par unité de surface de membrane :

$$\dot{n}_{H_2O} = \frac{j}{2F} = 2,3 \cdot 10^{-6} \text{ mol.s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2} \quad (1.11)$$

L'eau est produite sous forme liquide dans la zone active de la cathode. Cependant, elle peut se vaporiser dans la zone active et dans la zone de diffusion. Les informations manquent à ce sujet. Concernant l'état de l'eau lors de l'introduction dans le canal par l'électrode, on considérera toutes les hypothèses : liquide, vapeur ou les deux.

Marchand (1998) a montré que les écoulements intermittents peuvent également être présents à l'anode. Ceci montre qu'une quantité d'eau non négligeable peut traverser la membrane pour être évacuée dans les canaux qui distribuent l'hydrogène. Ainsi, plusieurs hypothèses seront à considérer : soit l'eau est évacuée totalement à la cathode, soit une partie seulement, le reste étant évacué à l'anode.

## Alimentation en air

De la même manière que précédemment, en remarquant qu'il faut fournir 1 mole d' $O_2$  à la cathode pour 4 moles d'électrons, on obtient :

$$\dot{n}_{O_2} = \frac{j}{4F} = 1,2 \cdot 10^{-6} \text{ mol.s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2} \quad (1.12)$$

Si l'on considère que de l'air sec est introduit à l'entrée du canal, l'oxygène est présent à 21%. De plus, on peut introduire plus d'oxygène qu'il n'en faut, pour pallier aux pertes diverses. Le coefficient stoechiométrique  $1 < \lambda < 2$  permet d'en tenir compte. Ainsi :

$$\dot{n}_d = \frac{\lambda \cdot j}{0,21 \cdot 4F} = \lambda 5,6 \cdot 10^{-6} \text{ mol.s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2} \quad (1.13)$$

Cependant, l'air est souvent humide en entrée. On doit donc prendre en compte la température et l'humidité relative. Les deux sont imposées en entrée. La température donne la pression de vapeur saturante  $P_{sat}(T)$ . L'humidité relative donne le rapport de la pression partielle de vapeur sur la pression de vapeur saturante  $\phi = P_w/P_{sat}$ . La pression totale du gaz  $P_t$  en entrée est connue. De plus,  $P_t = P_w + P_d$  où  $P_d$  est la pression de l'air sec. Le rapport de mélange donne la masse de vapeur par unité de masse d'air sec. Il peut être exprimé avec les paramètres connus et imposés en entrée :

$$r = \frac{\rho_w}{\rho_d} = \frac{M_v}{M_d} \cdot \frac{P_w}{P_d} = 0.622 \frac{P_w}{P_d} = 0.622 \frac{P_w}{P_t - P_w} = 0.622 \frac{\phi P_{sat}}{P_t - \phi P_{sat}}$$

où  $M_v = 18.10^{-3} kg.mol^{-1}$  est la masse molaire de la vapeur d'eau et  $M_d = 28,97.10^{-3} kg.mol^{-1}$  est la masse molaire de l'air sec. Ainsi, le débit molaire d'air humide  $\dot{n}_h$  par unité de surface de membrane est :

$$\dot{n}_h = (1 + r) \frac{M_h}{M_d} \dot{n}_d \quad (1.14)$$

où  $M_h$  est la masse molaire de l'air humide :

$$M_h = \frac{M_d + r.M_v}{1 + r}$$

Ainsi, nous avons les relations reliant la production d'eau à la membrane qui sera à évacuer dans le canal, et le débit de gaz nécessaire en entrée, aux paramètres suivant :

- La pression  $P$
- La température  $T$  en entrée
- L'humidité relative  $\phi$
- La stoechiométrie  $\lambda$
- La densité de courant  $j$
- La taille de la membrane  $S_m$

### 1.5.2 Influence des débits aux parois sur l'écoulement

#### Débit d'eau à la paroi

Pour évaluer le débit d'eau qui entre dans le canal par la paroi de l'électrode, on considère une membrane de surface caractéristique  $S_m = 10 * 10 cm = 100 cm^2$ . Le canal, pour parcourir l'ensemble de cette surface, est alors une succession de parties horizontales de longueur  $L = 10 cm$  et de coudes. Chaque partie horizontale, de hauteur  $h = 1 mm$ , est distante de  $1 mm$  de ses voisines. Ainsi, pour une hauteur totale de  $10 cm$ , il y a environ 50 parties horizontales de surface  $1 cm^2$  chacune, ce qui donne une surface totale d'échange  $S_{tot} = 50 cm^2$ .

En considérant un fonctionnement de la pile délivrant une densité de courant  $j \simeq 0.45 A.cm^{-2}$ , le débit molaire d'eau produit par la membrane de surface  $S_m = 100 cm^2$  est, d'après la relation (1.11) :  $\dot{n}_{H_2O} \simeq 2,3.10^{-4} mol/s$ . Le tableau (1.4) fourni par Renault donne un débit molaire maximal d'eau comparable  $(\dot{n}_{H_2O})_{max} \simeq 2.10^{-3} mol/s$ . Ainsi, avec ces deux valeurs, la vitesse d'entrée de l'eau dans le canal par la paroi de l'électrode  $V_{H_2O,in}$  est de l'ordre de :

$$V_{H_2O,in} \simeq \frac{\dot{n}_{H_2O} \cdot M_{H_2O}}{S_{tot} \cdot \rho_{H_2O}} \simeq 1 \text{ à } 10 \mu m/s$$

où  $M_{H_2O}$  est la masse molaire de l'eau et  $\rho_{H_2O}$  la masse volumique.

On peut chercher à évaluer  $V_{H_2O,in}$  en fonction de la vitesse superficielle du liquide  $U_{LS}$  en sortie du canal. La conservation du débit donne :

$$V_{H_2O,in} = \frac{S_s}{S_{tot}} U_{LS}$$

où  $S_s/S_{tot} = 1/5000$ ,  $S_s = 1 \text{ mm}^2$  étant la surface de la section du canal. Cette vitesse d'entrée par la paroi de l'électrode représente donc une petite fraction de la vitesse en sortie du canal.

De plus, toujours par conservation du débit, on peut montrer que la vitesse de l'eau varie de 1% entre l'entrée et la sortie d'une partie horizontale du canal. On peut ainsi imaginer que l'introduction de l'eau par la paroi de l'électrode, du fait de sa faible vitesse, ne viendra pas perturber la dynamique de l'écoulement diphasique le long d'une partie horizontale du canal.

### Débit d'oxygène à la paroi

Nous avons montré précédemment que le débit molaire d'oxygène nécessaire par unité de surface de membrane est :

$$\dot{n}_{O_2} = 1,2 \cdot 10^{-6} \text{ mol} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$$

Ainsi, pour une membrane de surface  $S_m = 100 \text{ cm}^2$ , le débit molaire correspondant est :

$$\dot{n}_{O_2} \simeq 1,2 \cdot 10^{-4} \text{ mol/s}$$

Pour une surface totale du canal donnant sur l'électrode  $S_{tot} = 50 \text{ cm}^2$ , la vitesse d'entrée de l'oxygène dans l'électrode  $V_{O_2,out}$  est donc de l'ordre de :

$$V_{O_2,out} = \frac{\dot{n}_{O_2} \cdot M_{O_2}}{S_{tot} \cdot \rho_{O_2}} \simeq 0.1 \text{ mm/s}$$

Par conservation du débit et dans ces conditions, pour une vitesse débitante de l'air en entrée du canal de l'ordre de  $10 \text{ m/s}$  (cf. tableau 1.6), cela correspond à une variation de 5% entre l'entrée et la sortie du canal et de 0.1% entre l'entrée et la sortie d'une partie horizontale. Ici également, on en déduit que la dynamique de l'écoulement diphasique dans une partie horizontale n'est pas perturbée par le flux d'oxygène dans l'électrode.

### 1.5.3 Influence de la géométrie sur l'écoulement

Compte tenu de la géométrie du canal d'alimentation deux géométries bien particulières sont à considérer :

1. La partie rectiligne : figure (1.15)
2. Le coude : figure (1.16)

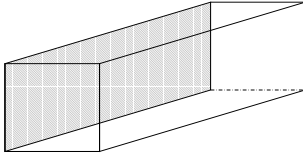


FIG. 1.15 – Partie rectiligne du canal  
- La partie sombre correspond à l'électrode

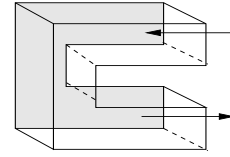


FIG. 1.16 – Coude - Les flèches montrent le sens de déplacement de l'écoulement.

Si l'on considère les ordres de grandeur précédents ( $d_H = 1mm$ ), une partie rectiligne est de longueur  $100 d_H$ . Or, en écoulement laminaire monophasique, un régime est établi à partir d'une distance de l'ordre de  $10 d_H$ . Celle-ci étant bien inférieure à la longueur totale  $100 d_H$ , trois zones d'écoulement dans la partie horizontale apparaissent alors (figure 1.17) :

- La zone 1, de longueur  $10 d_H$ , où l'écoulement est en cours d'établissement.
- La zone 2, de longueur  $80 d_H$ , où l'écoulement est établi.
- La zone 3, de longueur  $10 d_H$ , est la zone d'influence du coude en sortie de la partie horizontale.

Pour un écoulement monophasique, l'influence des coudes n'intervient que dans les zones 1 et 3.

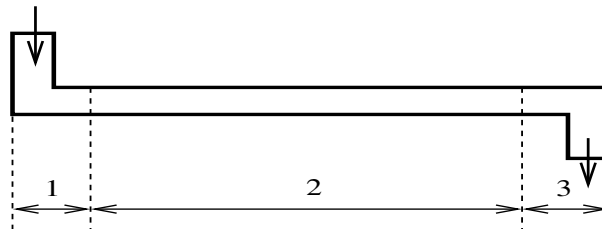


FIG. 1.17 – Trois zones d'écoulement dans une partie horizontale du canal

Cependant l'influence du coude sur la structure l'écoulement en situation diphasique en minicanaux n'est pas aussi triviale notamment sous l'effet du mouillage du liquide sur les parois bipolaires et du démouillage sur la paroi de la GDL. L'objet de ce travail est de considérer le comportement dans la partie rectiligne du canal. Une étude spécifique de l'évolution de l'écoulement dans un coude du canal permettrait de connaître son impact sur le régime d'écoulement dans la partie rectiligne suivante. Rappelons en effet que, selon l'hypothèse de [Marchand \(1998\)](#), le passage d'un coude pourrait être à l'origine de la formation du régime doublement stratifié.

### 1.5.4 Paramètres essentiels du problème

Nous pouvons maintenant classer les différents paramètres qui contrôlent l'écoulement dans les mini-canaux dans le tableau (1.3). Pour la thermique, nous devons connaître la température des parois ainsi qu'en entrée du canal. Pour le changement de phase, l'humidité relative du gaz entrant est importante. A l'électrode, un flux d'eau est présent sous forme vapeur ou liquide.

Géométrie	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Diamètre hydraulique <math>d_H</math></li> <li>2. Longueur du canal <math>L</math>, hauteur <math>h</math> et profondeur <math>l</math></li> <li>3. Partie horizontale ou coude</li> </ol>
En entrée	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Débit molaire de gaz <math>\dot{n}_{gaz}</math></li> <li>2. Température <math>T</math></li> <li>3. Pression totale <math>P_t</math></li> <li>4. Humidité relative <math>\phi</math></li> <li>5. Composition du gaz</li> </ol>
Conditions aux limites (4 parois)	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Température</li> <li>2. Flux molaire de <math>H_2O</math> à l'électrode <math>\dot{n}_{H_2O}</math></li> <li>3. Mouillabilité : angle de contact <math>\theta</math></li> </ol>
Puissance recherché	<ol style="list-style-type: none"> <li>1. Densité de courant <math>j</math></li> <li>2. Tension moyenne d'une cellule <math>V_c</math></li> <li>3. Surface de membrane <math>S_m</math></li> <li>4. Stoechiométrie du gaz <math>\lambda</math></li> </ol>

TAB. 1.3 – Classification des paramètres essentiels

Le tableau (1.4), fourni par Renault, présente la gamme de fonctionnement de quelques paramètres (température, pression, débits molaires...) qui interviennent dans une pile à combustible.

Nous avons également besoin des propriétés physiques des différents fluides présents dans la pile : hydrogène, oxygène, air sec ou humide, eau liquide... Ces propriétés sont présentées dans le tableau (1.5) pour la gamme de température et de pression donnée dans le tableau (1.4).

Composition	Anode	Cathode
Gaz	Composition sèche $H_2$ 40% - $CO_2$ 29 % - $N_2$ 31 % + vapeur d'eau	Composition sèche $O_2$ 21% - $N_2$ 79 % + vapeur d'eau
Liquide	Eau liquide	Eau liquide
Température	ambiante à +110°C	ambiante à +110°C
Pression	ambiante à 4 bar absolu	ambiante à 4 bar absolu
Débit de gaz Entrée (mol/s)	de $7.10^{-5}$ à $1,6.10^{-3}$ mol/s	de $1.10^{-4}$ à $2,1.10^{-3}$ mol/s
Débit de gaz Sortie (mol/s)	de $4.10^{-5}$ à $1,2.10^{-3}$ mol/s	de $8.10^{-5}$ à $1,9.10^{-3}$ mol/s
Débit de liquide entre Entrée et Sortie	de 0 à $2.10^{-3}$ mol/s	de 0 à $2.10^{-3}$ mol/s
Matériaux du canal	3 faces : graphite, ou composite graphite polymère, ou acier inoxydable ou titane + revêtement 1 face : poreux carboné + PTFE	3 faces : graphite, ou composite graphite polymère, ou acier inoxydable ou titane + revêtement 1 face : poreux carboné + PTFE

TAB. 1.4 – Fonctionnement usuel d'une pile à combustible - Source : Renault

Fluide	Masse volumique ( $kg.m^{-3}$ )			Viscosité dynamique ( $Pa.s$ )			Tension de surface ( $N.m^{-1}$ )			Masse molaire ( $kg.mol^{-1}$ )
<b>Eau liquide</b>	$T = 20C$	$P = 1\ bar$	$P = 4\ bar$	$T = 20C$	$P = 1\ bar$	$P = 4\ bar$	$T = 20C$	$P = 1\ bar$	18.10 <sup>-3</sup>	
	$T = 80C$	998	998	$T = 80C$	1,00.10 <sup>-3</sup>	1,00.10 <sup>-3</sup>	$T = 80C$	0.072		
	$T = 110C$	vapeur	972	$T = 110C$	3,54.10 <sup>-4</sup>	3,54.10 <sup>-4</sup>	$T = 80C$	0.063		
$H_2$		$P = 1\ bar$	$P = 4\ bar$		vapeur	2,55.10 <sup>-4</sup>		0.057	2.10 <sup>-3</sup>	
	$T = 20C$	0.0827	0.3300		$P = 1\ et\ 4\ bar$		gaz			
	$T = 80C$	0.0686	0.2740	$T = 20C$	8,81.10 <sup>-6</sup>					
	$T = 110C$	0.0632	0.2526	$T = 80C$	1,00.10 <sup>-5</sup>					
$O_2$		$P = 1\ bar$	$P = 4\ bar$		1,06.10 <sup>-5</sup>				32.10 <sup>-3</sup>	
	$T = 20C$	1.314	5.266		$P = 1\ et\ 4\ bar$		gaz			
	$T = 80C$	1.090	4.363	$T = 20C$	2,02.10 <sup>-5</sup>					
	$T = 110C$	1.005	4.019	$T = 80C$	2,34.10 <sup>-5</sup>					
<b>Air sec</b>		$P = 1\ bar$	$P = 4\ bar$		2,49.10 <sup>-5</sup>				28,97.10 <sup>-3</sup>	
	$T = 20C$	1.189	4.754		$P = 1\ et\ 4\ bar$		gaz			
	$T = 80C$	0.987	3.947	$T = 20C$	1,85.10 <sup>-5</sup>					
	$T = 110C$	0.909	3.638	$T = 80C$	2,10.10 <sup>-5</sup>					
<b>Air humide saturé</b> ( $\phi = 100\%$ )		$P = 1\ bar$	$P = 4\ bar$		2,25.10 <sup>-5</sup>				28,97.10 <sup>-3</sup>	
	$T = 20C$	1.182	4.748		$P = 1\ et\ 4\ bar$		gaz			
	$T = 80C$	0.852	3.831	$T = 20C$	$\simeq 1,84.10^{-5}\ (?)$					
<b>Mélange gazeux saturé</b> ( $\phi = 100\%$ ) $H_2 : 40\%$ $CO_2 : 29\%$ $N_2 : 31\%$		$P = 1\ bar$	$P = 4\ bar$		$\simeq 1,53.10^{-5}\ (?)$				28,97.10 <sup>-3</sup>	
	$T = 20C$	0.956	3.840		$P = 1\ et\ 4\ bar$		gaz			
	$T = 80C$	0.732	3.133	$T = 20C$	?					
				$T = 80C$	?					

TAB. 1.5 – Propriétés physiques de différents fluides pouvant être présents dans une pile. Les "?" indiquent des valeurs incertaines



### 1.5.5 Nombres adimensionnels pour une pile en fonctionnement

Une analyse dimensionnelle peut être faite, dans les conditions opératoires de la pile. Nous pouvons calculer les nombres adimensionnels pertinents à partir des données des tableaux (1.4) et (1.5) pour  $T = 20C$  et  $T = 80C$ , et pour  $P = 1bar$  et  $P = 4bar$ . Nous considérons une section carrée de 1 mm de côté :  $S_s = 10^{-6}m^2$  et  $d_H = 1mm$ . Nous rappelons qu'un choix possible de nombres est :

$$\begin{aligned} Eo &= \frac{\frac{\Delta\rho}{\rho_L} \Delta\rho g d_H^2}{\sigma} \\ We_{LS} &= \frac{\rho_L d_H U_{LS}^2}{\sigma} & We_{GS} &= \frac{\rho_L d_H U_{GS}^2}{\sigma} \\ Re_{LS} &= \frac{\rho_L d_H U_{LS}}{\mu_L} & Re_{GS} &= \frac{\rho_G d_H U_{GS}}{\mu_G} \end{aligned}$$

Dans les conditions de la pile nous avons :

$$\frac{\Delta\rho}{\rho_L} \simeq 1 \quad \text{et} \quad Eo \simeq 0.14$$

A noter que le rapport des viscosités (combinaison possibles des nombres de Reynolds et de Weber) vaut :

$$\frac{\mu_L}{\mu_G} \approx 15 \text{ à } 100$$

Pour obtenir les nombres de Weber et de Reynolds, nous avons besoin de connaître la vitesse superficielle des fluides dans le canal. Celle-ci s'obtient à partir de la relation suivante :

$$U_{i,S} = \frac{\dot{n}_i \cdot M_i}{S_s \cdot \rho_i} \quad (1.15)$$

où  $\dot{n}_i$  est le débit molaire du fluide  $i$  considéré issu du tableau (1.4) fourni par Renault,  $M_i$  la masse molaire,  $\rho_i$  la masse volumique et  $S_s = 1mm^2$  la surface de la section du canal. On fait l'hypothèse que les gaz en entrée et en sortie sont saturés en vapeur d'eau. Les résultats présentés dans le tableau (1.6) montrent la plage de variation des vitesses du gaz et du liquide dans la pile :

$$U_{GS} \approx 1 \text{ à } 56 m/s \quad (1.16)$$

$$U_{LS} \approx 0 \text{ à } 0,036 m/s \quad (1.17)$$

Nous pouvons maintenant calculer les nombres de Weber et les nombres de Reynolds, que nous présentons dans le tableau (1.7). A défaut de connaître la viscosité du mélange gazeux en entrée de l'anode, nous considérons celle de l'hydrogène. La viscosité intervient dans le calcul du

<b>Fluides</b>	<b>Anode</b>			<b>Cathode</b>		
<b>Liquide</b>	$U_{LS} (m/s)$	$P = 1 bar$	$P = 4 bar$	$U_{LS} (m/s)$	$P = 1 bar$	$P = 4 bar$
	$T = 20C$	0 à 0.036	0 à 0.036	$T = 20C$	0 à 0.036	0 à 0.036
	$T = 80C$	0 à 0.036	0 à 0.036	$T = 80C$	0 à 0.036	0 à 0.036
<b>Entrée</b>	$U_{GS} (m/s)$	$P = 1 bar$	$P = 4 bar$	$U_{GS} (m/s)$	$P = 1 bar$	$P = 4 bar$
	$T = 20C$	1.7 à 39.0	0.4 à 9.8	$T = 20C$	2.4 à 51.2	0.6 à 12.8
	$T = 80C$	2.0 à 47.0	0.5 à 11.7	$T = 80C$	2.9 à 61.7	0.7 à 15.4
<b>Sortie</b>	$U_{GS} (m/s)$	$P = 1 bar$	$P = 4 bar$	$U_{GS} (m/s)$	$P = 1 bar$	$P = 4 bar$
	$T = 20C$	1.0 à 29.2	0.2 à 7.3	$T = 20C$	1.9 à 46.3	0.5 à 11.6
	$T = 80C$	1.1 à 35.2	0.3 à 8.8	$T = 80C$	2.4 à 55.8	0.6 à 13.9

TAB. 1.6 – Vitesses superficielles des fluides  $U_{LS}$  et  $U_{GS}$ 

nombre de Reynolds  $Re_{GS}$ . Ce nombre n'est en fait pas très important. Il faut au contraire faire attention à  $We_{LS}$  et  $We_{GS}$  : ils nous renseignent sur la compétition inertie-capillarité que nous avons décrite précédemment. Quant à  $Re_{LS}$ , tel qu'il est construit (à partir de  $U_{LS}$ ), il est plus difficile à interpréter. En effet, selon le type de régime, ce n'est plus seulement  $U_{LS}$  qu'il faut considérer mais la vitesse du mélange  $U_{LS} + U_{GS}$ .

Les valeurs obtenus pour le nombre de Weber,  $We_{GS}$  et  $We_{LS}$ , sont à comparer aux relations (1.6 à 1.8) de Akbar *et al.* (2003). On remarque ainsi que l'on couvre a priori un domaine large, allant du régime intermittent au régime annulaire. L'augmentation de la pression diminue sensiblement  $We_{GS}$ , ce qui favorise le régime intermittent, dominé par la tension de surface. Par contre, l'augmentation de la température augmente légèrement  $We_{GS}$ , ce qui favorise le régime annulaire, dominé par l'inertie du gaz. Cependant, les valeurs de  $We_{GS}$  ne donnent pas de manière nette tel ou tel régime. On se situe essentiellement dans la zone de transition entre ces deux régimes.

Les valeurs de  $We_{LS}$  sont toujours inférieures à environ  $10^{-2}$ . La tension de surface est toujours dominante vis à vis de l'inertie du liquide. Cela favorise la formation des régimes doublement stratifié et semi-annulaire.

## 1.6 Conclusion

Ce chapitre introductif avait pour but principal de situer le contexte du travail présenté dans ce document. L'objectif est de progresser dans la compréhension des mécanismes physiques présents dans les mini-canaux d'alimentation de la pile à combustible. Le double rôle de ces canaux est l'alimentation en combustibles gazeux ( $H_2$  et  $O_2$ ) et l'évacuation de l'eau produite par la

Fluides	Anode			Cathode		
Liquide	$We_{LS}$	$P = 1 \text{ bar}$	$P = 4 \text{ bar}$	$We_{LS}$	$P = 1 \text{ bar}$	$P = 4 \text{ bar}$
	$T = 20C$	0 à 0.018	0 à 0.018	$T = 20C$	0 à 0.018	0 à 0.018
	$T = 80C$	0 à 0.020	0 à 0.020	$T = 80C$	0 à 0.020	0 à 0.020
	$Re_{LS}$	$P = 1 \text{ bar}$	$P = 4 \text{ bar}$	$Re_{LS}$	$P = 1 \text{ bar}$	$P = 4 \text{ bar}$
	$T = 20C$	0 à 36	0 à 36	$T = 20C$	0 à 36	0 à 36
	$T = 80C$	0 à 650	0 à 650	$T = 80C$	0 à 650	0 à 650
Entrée	$We_{GS}$	$P = 1 \text{ bar}$	$P = 4 \text{ bar}$	$We_{GS}$	$P = 1 \text{ bar}$	$P = 4 \text{ bar}$
	$T = 20C$	0.038 à 20.2	0.009 à 5.1	$T = 20C$	0.095 à 43.0	0.024 à 10.8
	$T = 80C$	0.046 à 25.7	0.012 à 6.8	$T = 80C$	0.114 à 51.5	0.030 à 14.4
	$Re_{GS}$	$P = 1 \text{ bar}$	$P = 4 \text{ bar}$	$Re_{GS}$	$P = 1 \text{ bar}$	$P = 4 \text{ bar}$
	$T = 20C$	184 à 4232	174 à 4271	$T = 20C$	154 à 3289	155 à 3303
	$T = 80C$	146 à 3440	157 à 3666	$T = 80C$	161 à 3435	175 à 3856
Sortie	$We_{GS}$	$P = 1 \text{ bar}$	$P = 4 \text{ bar}$	$We_{GS}$	$P = 1 \text{ bar}$	$P = 4 \text{ bar}$
	$T = 20C$	0.013 à 11.3	0.002 à 2.8	$T = 20C$	0.059 à 35.2	0.016 à 8.90
	$T = 80C$	0.014 à 14.4	0.004 à 3.8	$T = 80C$	0.078 à 42.1	0.022 à 11.7
	$Re_{GS}$	$P = 1 \text{ bar}$	$P = 4 \text{ bar}$	$Re_{GS}$	$P = 1 \text{ bar}$	$P = 4 \text{ bar}$
	$T = 20C$	109 à 3469	87 à 3182	$T = 20C$	122 à 2974	129 à 2993
	$T = 80C$	80 à 2577	94 à 2757	$T = 80C$	134 à 3107	150 à 3480

TAB. 1.7 – Nombres adimensionnels  $Re$  et  $We$  pour les différents fluides

réaction.

Pour cette étude la voie numérique a été choisie car elle permet le contrôle de manière précise des nombreux paramètres listés ci-dessus. Pour cela, la version "Capture d'Interface" du code JADIM développé à l'IMFT a été mise en oeuvre et la modélisation numérique du mouillage a du être implémentée afin de décrire les effets capillaires présents dans les canaux dont la taille est inférieure à la longueur capillaire. Dans de telles conditions les effets de mouillage et de démouillage, l'hystérésis de la ligne de contact ainsi que les instabilités capillaires sont suspectés de jouer un rôle essentiel dans l'organisation des phases. Rappelons qu'un fonctionnement optimal d'une pile est obtenu lorsque la surface d'échange avec la zone de diffusion gazeuse (GDL) de chaque électrode est maximale. Typiquement deux phénomènes physiques sont ici étudiés :

- la migration dans le canal des gouttelettes formées par la production de l'eau sur la zone de diffusion gazeuse (GDL),
- l'évolution et la stabilité de la répartition spatiale des phases lors du remplissage progressif des canaux.

Le second chapitre présente le code JADIM et plus particulièrement le module "Capture d'Interface" qui met en oeuvre une approche de type VOF (Volume of Fluid) sans étape de reconstruction de l'interface. Quelques tests additionnels sont présentés concernant le calcul dans cette formulation du terme capillaire.

Le troisième chapitre présente l'implémentation numérique du mouillage : l'angle statique, l'hystéresis et l'angle dynamique sont introduit dans le code JADIM et des tests de validation sont présentés.

Le quatrième chapitre présente des mesures expérimentales de l'angle de contact sur les matériaux utilisés pour la construction des piles à combustibles. Des mesures de l'hystéresis sont ainsi réalisées sur les parois de la plaque bipolaires ainsi que sur la GDL.

Le cinquième chapitre présente les résultats bi-dimensionnels de la migration de gouttes en canal sous l'effet de la gravité et du cisaillement d'un écoulement. Les résultats obtenus dans le diagramme des nombres adimensionnels pertinents sont ensuite interprétés pour les paramètres caractéristiques d'un canal de pile.

Le sixième chapitre étudie les conditions de migration en situation tridimensionnelle de goutte perlant à la surface de la GDL. L'effet des principaux paramètres (position de la goutte, gravité, contraste de mouillabilité, température, coalescence) est étudié dans les conditions de la pile. Une discussion est introduite sur la vitesse de migration d'une goutte induite par un contraste de mouillabilité.

Le septième chapitre présente l'organisation spatiale des phases pour un remplissage quasi-statique en eau du canal. Les différents scenari de remplissage sont discutés ainsi que l'influence du rapport de forme de la section du canal et des propriétés de mouillage des parois.

Le dernier chapitre aborde les transitions des écoulements en mini-canaux et mini-tube. Deux types d'instabilité y sont considérées : l'instabilité visqueuse induite par le contraste de viscosité entre les deux fluides en présence et l'instabilité capillaire. Les résultats numériques sont comparées aux cartes de configuration obtenues expérimentalement en canal millimétrique.

La conclusion finale résume les principaux résultats obtenus dans ce travail et discute des perspectives.



## Chapitre 2

# Le code JADIM

La simulation numérique des écoulements diphasiques est actuellement en plein essor. Elle permet en effet d'avoir accès à un grand nombre d'informations hydrodynamiques et de simuler des configurations difficilement accessibles expérimentalement.

C'est une des motivations pour laquelle l'étude des écoulements diphasiques dans les minicanaux d'une pile à combustible a été entreprise par le moyen de la simulation numérique. Le code JADIM développé au sein du Groupe Interface de l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (IMFT) est utilisé durant la thèse dans ce but. Cela a nécessité l'implémentation numérique de modèles physiques décrivant correctement la physique du mouillage.

Nous présentons ici de manière détaillée le code de calcul utilisé. Le chapitre se compose de trois parties. La partie 1 décrit le panorama général des méthodes numériques utilisées pour simuler le mouillage. La méthode retenue pour être implémentée dans le code y trouve naturellement sa place. La partie 2 constitue une présentation générale du code et de son schéma numérique. La partie 3 décrit les modèles physiques et les méthodes numériques développées pour décrire les éléments essentiels du mouillage. Finalement la partie 4 présente de nouveaux cas-tests de validation concernant le calcul de la force capillaire.

### 2.1 Simulation du mouillage : méthodes numériques

Les études numériques du mouillage sont encore relativement limitées compte tenu de la difficulté de la physique à reproduire qui est encore partiellement comprise. La réalisation de simulations numériques directes au sens strict du terme nécessiterait la description des interactions entre les fluides en présence et la paroi jusqu'à des échelles permettant de reproduire les interactions intermoléculaires (Van der Waals). Ainsi à l'échelle de la description macroscopique consistante avec la formulation des équations de Navier-Stokes utilisées ici, un modèle physique pour décrire le mouillage est nécessaire. On parle alors d'angle apparent. Les principales études

numériques du mouillage se différencient :

(i) Par la stratégie numérique adoptée pour décrire la déformation et le déplacement de l'interface :

- les méthodes d'intégrale de frontière (Schleizer & Bonnecaze (1999), Dimitrikapoulos & Higdon (2001), Glasner (2005)),
- les maillages adaptatifs (Finlow *et al.* (1996), Shen & Ruth (1998)),
- les méthodes Level Set (Spelt (2005), Liu *et al.* (2005)),
- les méthodes Volume Of Fluid (VOF) (Renardy *et al.* (2001)),
- les méthodes de suivi de front (Front-Tracking) (Khenner (2004)).

(ii) Par la manière dont le mouillage est modélisé. Cela peut être :

- en imposant un angle constant (Khenner (2004), Renardy *et al.* (2001)),
- en imposant un angle dynamique (Spelt (2005), Glasner (2005)),
- par la modélisation de l'hystérésis (Liu *et al.* (2005), Spelt (2005)),
- par le calcul de l'angle à l'aide d'une méthode d'interface diffuse (Jacqmin (2000), Ding & Spelt (2007)).

Dans la suite, nous présentons rapidement le principe des différentes approches numériques mises en oeuvre pour la modélisation de l'angle de contact.

### 2.1.1 Méthodes intégrales de frontière

Les méthodes intégrales sont aussi appelées méthodes des "éléments de frontière". Elles sont limitées aux écoulements potentiels ou aux écoulements de Stokes. Elles permettent de résoudre le problème sans mailler tout le domaine de calcul puisque la solution en tout point de l'espace dépend uniquement de sa surface. Ainsi, il importe de mailler seulement cette surface, ce qui peut généralement présenter un gain important de temps de calcul et de mémoire. Dans le cas du mouillage, les études ont considéré des écoulements de Stokes et ont porté essentiellement sur la forme d'une goutte statique dont l'angle de contact reste compris dans l'intervalle défini par l'hystérésis.

Li & Pozrikidis (1996) ont étudié la déformation de l'interface d'une goutte 3D adhérent à une surface dans un écoulement de Stokes, en l'absence de gravité. La ligne de contact est supposée rester circulaire ou elliptique. Le rapport des viscosités est fixé à l'unité et la tension de surface est constante. L'étude porte sur l'influence du volume de la goutte, de la forme initiale de la ligne de contact et du nombre capillaire, ainsi que de l'hystérésis.

Dans une configuration 2D, Schleizer & Bonnecaze (1999) ont étudié la forme d'une goutte soumise à un écoulement cisailé ou à un gradient de pression entre deux plaques parallèles,

la goutte étant posée sur la plaque inférieure. L'étude est similaire à la précédente mais introduit l'influence du rapport des viscosités. De plus, la présence de surfactants induisant l'effet Marangoni est prise en compte.

La variation du rapport des viscosités est possible en 2D mais devient difficile en 3D. C'est la raison pour laquelle [Li & Pozrikidis \(1996\)](#) ont restreint leur étude 3D au rapport des viscosités égal à l'unité. Pour étendre l'étude 2D au 3D sans limiter la variation des paramètres de contrôle, [Dimitrikapoulos & Higdon \(1997\)](#) ont développé un algorithme couplant une méthode des intégrales de frontière pour résoudre l'écoulement de Stokes cisailé et une méthode de Newton pour déterminer la forme de l'interface. Leur étude a porté sur la déformation d'une goutte dans un écoulement de Stokes en présence de gravité. Le même problème a ensuite été étudié en 3D ([Dimitrikapoulos & Higdon \(1998\)](#)).

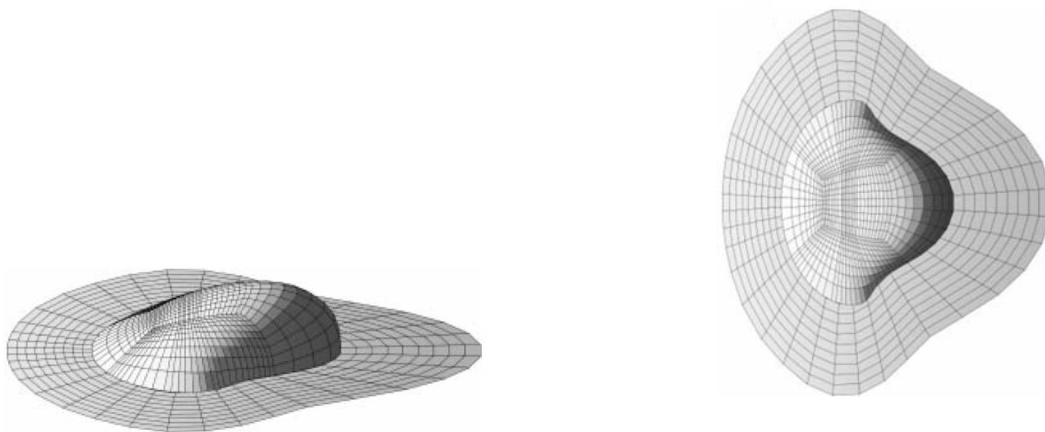


FIG. 2.1 – Exemple de forme de goutte - [Dimitrikapoulos & Higdon \(2001\)](#)

Puis l'analyse a porté sur le cas d'une goutte sur un plan incliné ([Dimitrikapoulos & Higdon \(1999\)](#)) ou dans un gradient de pression entre deux plaques parallèles ([Dimitrikapoulos & Higdon \(2001\)](#)).

Ces méthodes permettent une étude précise et la comparaison avec des résultats analytiques. Cependant, leur cadre de validité est très contraignant : écoulement de Stokes, impossibilité de rupture de l'interface, goutte statique . . . Nous utiliserons ces résultats pour la validation de l'implémentation de l'hystérésis de l'angle de contact au sein du code JADIM.



### 2.1.2 Méthodes lagrangiennes

Dans les méthodes lagrangiennes, l'interface constitue une frontière du domaine de calcul. Le maillage est alors mobile et adaptatif, et doit être redéfini à chaque itération. On accède ainsi à une solution (hydrodynamique, position de l'interface) avec une grande précision. Cependant, il n'est plus possible de simuler simplement des cas de rupture et de reconnexion d'interface (cas d'une grande partie des écoulements diphasiques). Ces méthodes ont permis par exemple l'étude des déformations et oscillations de particules fluides (Blanco (1995), Duraiswami & Prosperetti (1992)). Dans l'étude du mouillage, elles sont particulièrement adaptées pour décrire l'évolution d'un ménisque dans un tube capillaire.

Finlow *et al.* (1996) étudient la forme d'un ménisque mouillant partiellement deux parois verticales, dont l'une se déplace à une vitesse fixée. Le maillage mobile 2D utilisé est raffiné à l'interface, à la paroi en mouvement et particulièrement au point triple où une condition de glissement est introduite (figure 2.2). Une méthode des éléments finis est employée. L'inertie et la gravité sont négligées. L'influence de la distance entre ces parois est étudiée dans une large gamme de nombre capillaire  $Ca$ .

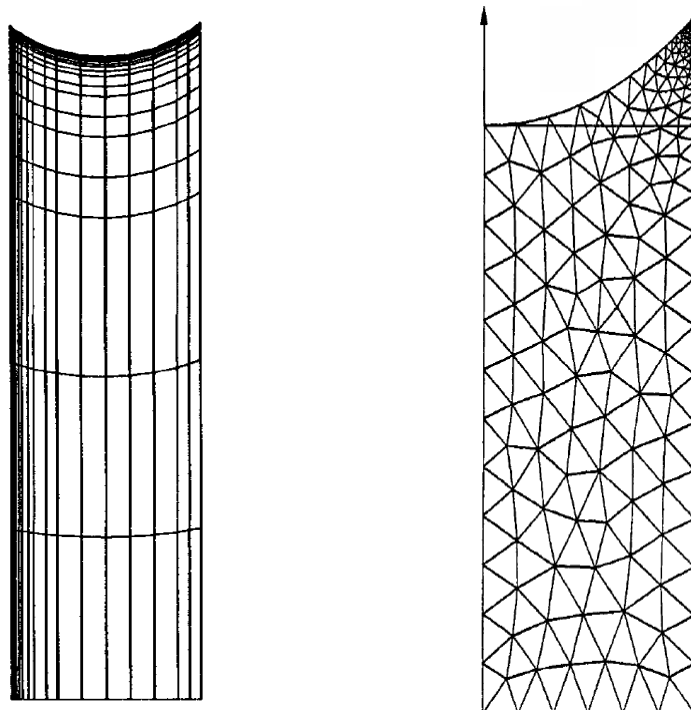


FIG. 2.2 – Maillage adaptatif mobile 2D raffiné au point triple pour une méthode lagrangienne - A gauche : Finlow *et al.* (1996). A droite : Shen & Ruth (1998)

Shen & Ruth (1998) étudient la forme du ménisque d'un liquide mouillant partiellement une paroi. Dans une situation 2D, ils utilisent également la méthode des éléments finis sur un maillage destructuré adaptatif : figure (2.2). L'écoulement est visqueux et la gravité est négligée. Ils résolvent ainsi l'équation de Stokes avec les conditions aux limites sur la paroi et à l'interface. Au point triple est considérée la condition de glissement de Navier, dans une faible gamme de nombre capillaire  $Ca$ .

La précision que présentent ces résultats numériques permet de comparer directement aux études analytiques du modèle de Dussan (modèle d'angle de contact dynamique présenté plus bas). Le domaine de validité de ce modèle est ainsi précisé.

### 2.1.3 Méthodes eulériennes

A la différence des méthodes lagrangiennes, les méthodes eulériennes utilisent un maillage fixe sur lequel l'interface peut librement évoluer. L'interface n'est plus une condition aux limites du domaine de calcul mais devient une inconnue supplémentaire. Ainsi, puisqu'une cellule de calcul peut contenir plusieurs fluides, les équations de bilan local et instantané ne peuvent plus être utilisées directement. Il importe de considérer les phases comme un milieu diphasique qui doit être décrit par une autre formulation des équations de bilan. On parle alors de "modèle à un fluide" (modèle présenté plus bas). L'écoulement diphasique est alors représenté par un seul fluide dont les propriétés physiques varient brusquement lorsque l'on passe d'une phase à une autre. Cette variation se fait sur une épaisseur de quelques mailles afin de rendre stable le schéma numérique utilisé. Cependant, plusieurs approches existent dans la manière de localiser l'interface.

#### Méthode "Front Tracking"

Pour connaître avec précision la position de l'interface, cette approche consiste à ajouter un second maillage localisé à l'interface. Ainsi, le premier maillage est fixe et décrit le domaine de calcul tandis que le second, mobile, suit l'interface dans son mouvement. Cette méthode, introduite par Unverdi & Tryggvason (1992), permet d'évaluer précisément les contraintes visqueuses et la force capillaire à l'interface. Cependant, cette méthode est limitée aux écoulements où l'interface ne subit pas de rupture ou de reconnexion : la gestion du maillage mobile se révèle alors difficile.

L'étude du mouillage à l'aide de cette méthode a été entreprise par Duquenois (2000) puis développée par Mathieu (2003) pour l'analyse de la croissance d'une bulle de vapeur sur une paroi chauffée, actuellement limitée à une configuration 2D. L'évolution de l'angle de contact

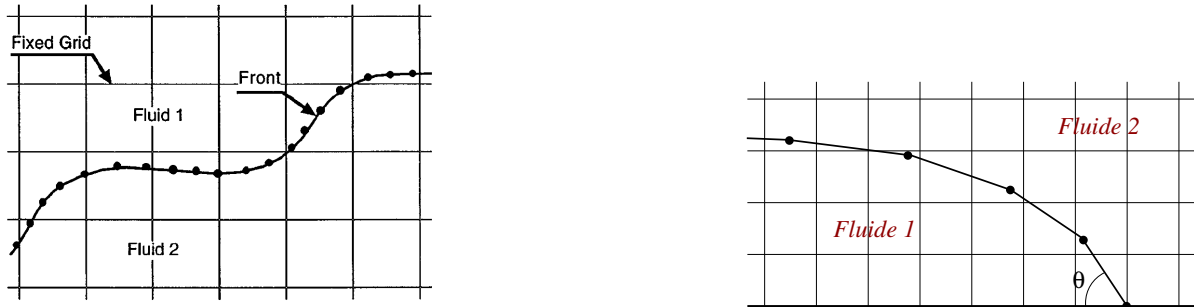


FIG. 2.3 – Maillages fixe et mobile dans la méthode Front Tracking (Tryggvason *et al.* (2001*b*)) - À droite : angle de contact à la paroi (Duquenois (2000)).

est décrite par le modèle de Dussan étendu au changement de phase. Khenner (2004) a adapté le code développé dans l'équipe de Tryggvason pour introduire un angle de mouillage constant. L'avantage de cette méthode est de connaître précisément la position de l'interface à la paroi. Aussi est-il aisé de contrôler l'angle de contact.

### Méthodes "Front Capturing"

Dans cette famille de méthodes, une fonction est utilisée comme indicatrice de phase et définie sur un seul maillage fixe. Cette fonction, pour la méthode "Level Set", est la distance à l'interface et, pour la méthode "Volume of Fluid", la fraction volumique de la phase considérée dans la maille considérée.

**Méthode "Level Set".** Nous renvoyons à l'ouvrage de Sethian (1996) pour une présentation de cette méthode. La méthode "Level Set" utilise une fonction lisse et régulière pour décrire la position de l'interface. Elle est positive dans une phase et négative dans l'autre, la valeur "zéro" permettant ainsi de localiser l'interface. En chaque point, une valeur est attribuée qui correspond à la distance entre ce point et l'interface. C'est pourquoi cette fonction est dite de distance signée. Une difficulté liée à cette méthode est la modification de la pente de la fonction indicatrice de phase par un écoulement non-uniforme. Cette pente est égale normalement à l'unité mais parfois modifiée par l'écoulement. Une étape de "réinitialisation" est alors nécessaire mais elle a tendance à modifier la position de l'interface et pose ainsi un problème de conservation de la masse.

Depuis les premiers développements de cette méthode par Osher & Sethian (1988), son utilisation se trouve dans les domaines aussi variés que les écoulements multiphasiques ou l'imagerie médicale (Osher & Fedkiw (2001)). Des récents développements concernant le mouillage ont été effectués par Spelt (2005) et concernent la simulation de l'hystérésis de l'angle de contact.

**Méthode "Volume of Fluid".** Une autre approche (présentée en détail plus bas) consiste à utiliser une fonction qui indique la quantité de phase considérée dans chaque maille d'un seul maillage fixe. Cette fonction "Volume of Fluid fonction" ou taux de présence de phase est définie dans tout le domaine de calcul. Cette méthode est particulièrement bien adaptée pour simuler des écoulements diphasiques à topologie d'interface complexe. Cependant, pour maîtriser la diffusion numérique de l'interface, celle-ci est généralement reconstruite à chaque pas de temps. Cependant, ce choix n'a pas été retenu dans le code JADIM, ce qui permet de simuler de manière plus directe des situations avec changements complexes de topologie comme les ruptures et les coalescences d'interface.

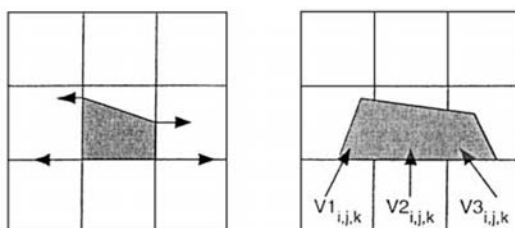


FIG. 2.4 – Reconstruction de l'interface - [Renardy \*et al.\* \(2001\)](#)

[Renardy \*et al.\* \(2001\)](#) ont choisi de reconstruire l'interface à chaque itération (figure 2.4). Cette étude porte sur l'étalement d'une goutte sur une paroi sans gravité, en imposant un angle d'équilibre constant. Elle utilise une formulation des équations du type "Différences finies" sur un maillage décalé. Le schéma numérique présente encore quelques restrictions : la conservation de la masse n'est pas assurée et l'étude est limitée au cas 2D. La dynamique de l'angle de contact ainsi que l'hystérésis ne sont pas décrits.

Cette rapide présentation a permis de montrer les différentes stratégies possibles pour décrire numériquement le mouillage. Pour cette étude nous utilisons le code JADIM développé à l'IMFT. Le code de calcul JADIM utilise une méthode de suivi d'interface de type VoF sans reconstruction d'interface. Développé à l'origine pour l'étude des écoulements à bulles, il est ici utilisé pour la simulation du mouillage.

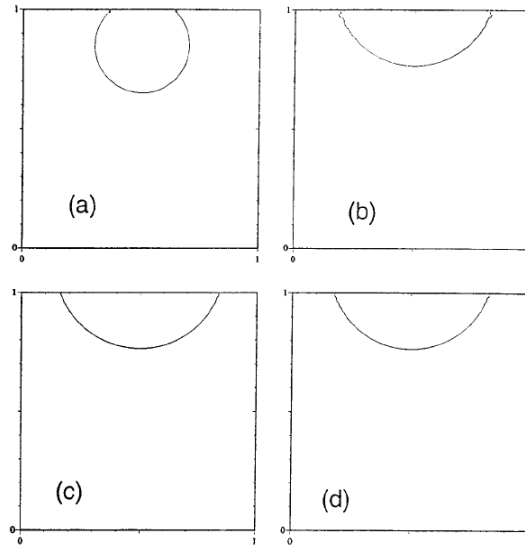


FIG. 2.5 – Exemple d'étalement d'une goutte en l'absence de gravité - [Renardy \*et al.\* \(2001\)](#)

## 2.2 Le code de calcul JADIM

Le code de calcul JADIM est développé dans le groupe Interface de l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (IMFT) depuis 1988. Il est l'œuvre de développement de plusieurs thèses successives encadrées essentiellement par Jacques Magnaudet et Dominique Legendre. Plusieurs thèses sont actuellement en cours et continuent son développement.

Il est composé d'un noyau central qui permet la résolution des équations de Navier-Stokes incompressibles, instationnaires et tridimensionnelles, écrites en coordonnées curvilignes orthogonales ([Rivero \(1991\)](#), [Calmet \(1995\)](#) et [Legendre \(1996\)](#)). Autour de ce noyau se trouvent 4 modules : « Large Eddy Simulation », « Lagrangien », « Thermique » et « Capture d'interface ». Le module « LES » permet d'étudier les écoulements turbulents par la simulation des grandes échelles ([Calmet \(1995\)](#)). Le module « Lagrangien » concerne le suivi d'une phase dispersée en résolvant la trajectoire de chaque particule ([Climent \(1996\)](#)). Avec le module « Thermique », on peut étudier l'advection-diffusion d'un scalaire passif ainsi que prendre en compte le changement de phase aux interfaces ([Legendre \(1996\)](#)). Enfin, le module « Capture d'interface » concerne les écoulements diphasiques avec interfaces complexes et évolutives ([Benkenida \(1999\)](#)).

Nous présentons ici le module « Capture d'interface » utilisé pour notre étude. Ce module a été initialement écrit par Dominique Legendre ([Magnaudet & Legendre \(1996\)](#)) puis développé successivement par [Benkenida \(1999\)](#), [Cranga \(2002\)](#) et [Bonometti & Magnaudet \(2007\)](#). Depuis septembre 2003, il bénéficie du soutien technique d'Annaïg Pedrono, ingénieur d'étude, qui assure le suivi des développements et l'amélioration des algorithmes, à partir d'une base CVS.

### 2.2.1 Le modèle à un fluide

Pour rendre compte totalement du comportement d'un écoulement diphasique, il importe de résoudre les équations de Navier-Stokes dans chaque phase en tenant compte des conditions de raccord à l'interface.

Ces conditions de raccord concernent la conservation de la masse à l'interface qui se traduit par une condition de raccord des vitesses normales :

$$\rho_1(\mathbf{U}_1 - \mathbf{V}) \cdot \mathbf{n} = \rho_2(\mathbf{U}_2 - \mathbf{V}) \cdot \mathbf{n} = J$$

où  $\rho_i$  est la masse volumique de la phase  $i$ ,  $\mathbf{n}$  la normale à l'interface sortant de la phase 1,  $\mathbf{V}$  la vitesse de l'interface,  $\mathbf{U}_i$  la vitesse dans la phase  $i$  et  $J$  le flux de masse sortant d'une phase par advection. La conservation de la quantité de mouvement à l'interface s'exprime par :

$$\Sigma_1 \cdot \mathbf{n} - \Sigma_2 \cdot \mathbf{n} = \nabla \cdot \mathbf{n} \sigma \mathbf{n} - J^2 \left( \frac{1}{\rho_1} - \frac{1}{\rho_2} \right) \mathbf{n} + \nabla_s \sigma$$

où  $\Sigma_i$  est le tenseur des contraintes visqueuses faisant intervenir la viscosité dynamique  $\mu_i$ ,  $\sigma$  la tension de surface et  $\nabla_s$  le gradient surfacique.

Pour l'étude d'un problème diphasique, il faut résoudre pour chaque phase l'équation de conservation de la masse et l'équation de conservation de la quantité de mouvement, ainsi que les conditions aux limites et de raccord. Le "modèle à un fluide" permet, sous certaines conditions, de ne résoudre qu'une seule équation de conservation de masse et une équation de quantité de mouvement pour tout le problème. L'interface peut alors évoluer librement sur un seul maillage fixe. De plus, le choix a été fait de ne pas reconstruire l'interface à chaque pas de temps. L'avantage essentiel est alors de permettre la simulation des phénomènes de rupture et de reconnection d'interface. De plus, l'extension du 2D au 3D ne pose pas de problèmes importants, la difficulté essentielle étant liée au passage du 1D au 2D. Cependant, ne pas reconstruire l'interface à chaque itération conduit à un épaississement numérique de l'interface de l'ordre de quelques mailles. Ce problème a pu être contenu en modifiant la vitesse à l'interface de manière à maintenir constante l'épaisseur de l'interface (Bonometti & Magnaudet (2007)). A noter que dans les méthodes où l'interface est connue précisément (Front tracking, VOF, Level Set) une épaisseur numérique est introduite pour les calculs des propriétés physiques afin de stabiliser la résolution.

Poser le problème diphasique nécessite d'introduire la distribution  $\chi$ , ou fonction indicatrice de phase. Cette fonction prend la valeur  $\chi = 1$  dans la phase considérée et  $\chi = 0$  dans l'autre phase. Elle est discontinue à l'interface. La théorie des distributions permet de dériver une telle fonction, aussi est-il possible d'écrire la conservation de  $\chi$  en suivant le mouvement de l'interface

de vitesse  $\mathbf{V}$  :

$$\frac{\partial \chi}{\partial t} + \mathbf{V} \cdot \nabla \chi = 0 \quad (2.1)$$

La discrétisation spatiale de l'espace physique conduit à imposer un filtrage spatial aux variables de l'équation (2.1). Le filtrage spatial appliqué à  $\chi$  donne la grandeur discrète  $C$  appelée taux de présence de phase :  $\langle \chi \rangle = C$ . L'interface présente alors un épaissement numérique : figure (2.6). Les termes de sous-maillles issus du filtrage de  $\mathbf{V} \cdot \nabla \chi$  sont négligés (Benkenida (1999)). On peut donc écrire la continuité à l'interface des vitesses filtrées  $\langle \mathbf{V} \rangle = \langle \mathbf{U}_1 \rangle = \langle \mathbf{U}_2 \rangle$ , vérifiée en absence de changement de phase et en l'absence de glissement local entre les deux phases. En notant  $\mathbf{U} = \langle \mathbf{V} \rangle$  la vitesse locale du mélange diphasique, on obtient l'équation de transport du taux de présence :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \mathbf{U} \cdot \nabla C = 0 \quad (2.2)$$

On obtient ainsi un système à 3 équations à résoudre :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \mathbf{U} \cdot \nabla C = 0 \quad (2.3)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{U} = 0 \quad (2.4)$$

$$\rho \left( \frac{\partial \mathbf{U}}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{U} \otimes \mathbf{U}) \right) = -\nabla P + \rho \mathbf{g} + \nabla \cdot \boldsymbol{\Sigma} - \langle \sigma \nabla \cdot \mathbf{n} \mathbf{n} \delta_I \rangle \quad (2.5)$$

où le dernier terme de l'équation (2.5) représente l'effet capillaire filtré ( $\nabla_s \sigma$  est négligé si l'on suppose que  $\sigma$  est constant).

Ainsi, on ne considère plus 2 fluides distincts mais un seul fluide dont les propriétés de densité et viscosité dépendent du taux de présence  $C(\mathbf{x}, t)$ . La densité est une variable extensive, on peut donc écrire :

$$\rho = C\rho_1 + (1 - C)\rho_2$$

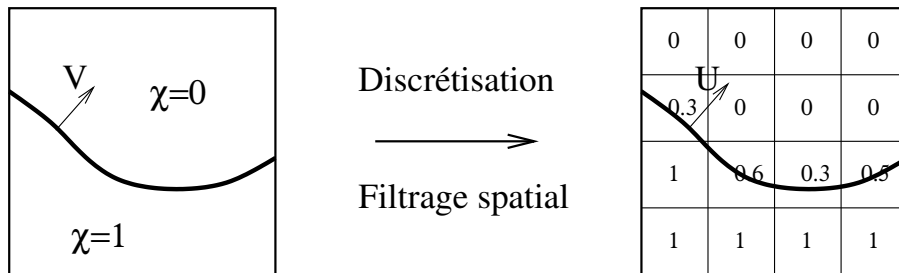


FIG. 2.6 – Description numérique des deux phases - A gauche : Fonction indicatrice de phase  $\chi$  - A droite : Fonction taux de présence de phase  $C$

Par contre, la viscosité ne l'est pas. [Benkenida \(1999\)](#) a montré qu'il est nécessaire d'écrire différemment la viscosité selon que l'on considère le raccord des contraintes normales ou des contraintes tangentielles :

$$\mu_{\perp} = C\mu_L + (1 - C)\mu_G \quad \text{et} \quad \mu_{\parallel} = \frac{\mu_L\mu_G}{C\mu_L + (1 - C)\mu_G}$$

L'équation de transport du taux de présence (2.3) fait actuellement l'objet de développement dans le but de limiter la dispersion et diffusion numériques inhérentes à la résolution numérique de ce type d'équation. Le terme capillaire dans l'équation de conservation de quantité de mouvement (2.5) fait l'objet de développement dans la présente étude afin de décrire la physique du mouillage.

## 2.2.2 Equations de Navier-Stokes

Dans notre étude, nous considérons des fluides incompressibles, newtoniens et isothermes. La tension de surface est constante. Les équations de conservation de la masse et de la quantité de mouvement sont écrites dans un référentiel absolu.

### Méthode numérique

Les équations sont écrites en variables vitesse-pressure et résolues par la méthode des Volumes Finis. Le domaine de calcul est divisé en éléments de volume  $\vartheta$  délimités par une surface  $\Gamma$ . Elles sont écrites en coordonnées curvilignes orthogonales  $\xi$  ([Legendre \(1996\)](#)) :

$$\int_{\Gamma} V_i n_i d\Gamma = 0 \tag{2.6}$$

$$\begin{aligned} \int_{\vartheta} \frac{\partial V_i}{\partial t} dv &= - \int_{\vartheta} \frac{1}{\rho} \frac{\partial P}{\partial \xi_i} dv & (2.7) \\ &+ \int_{\vartheta} g_i dv \\ &+ \int_{\vartheta} H_j^i V_j V_j dv - \int_{\vartheta} H_i^j V_j V_i dv - \int_{\Gamma} V_i V_j n_j d\Gamma \\ &- \int_{\vartheta} H_j^i \tau_{jj} dv + \int_{\vartheta} H_i^j \tau_{ii} dv + \int_{\Gamma} \tau_{ij} n_j d\Gamma \\ &+ \int_{\vartheta} \frac{1}{\rho} F_{v_i} dv \end{aligned}$$

où l'on reconnaît les termes de pression, gravité, advection, diffusion visqueuse et capillarité.  $H_i^j$  sont les facteurs de courbure et  $\tau_{ij}$  les composantes du tenseur des contraintes visqueuses qui



s'écrivent :

$$\tau_{ij} = \frac{\mu}{\rho} \left( \frac{\partial V_i}{\partial \xi_j} + \frac{\partial V_j}{\partial \xi_i} - H_j^i V_j - H_i^j V_i + 2H_i^k V_k \delta_{ij} \right) \quad (2.8)$$

Tous les termes sont calculés de manière explicite à l'exception de  $\int_{\Gamma} \frac{\mu}{\rho} \frac{\partial V_i}{\partial \xi_j} n_j d\Gamma$  qui est calculé en implicite.

### Discrétisation spatiale

Le maillage utilisé est de type variables décalées. La figure (2.7) montre la position des variables pour un maillage 2D cartésien irrégulier et pour un maillage 3D cartésien régulier. Chaque facette des mailles est équidistante aux points de pression et de taux de présence. Les variables de vitesse sont définies au centre de ces facettes et non au centre des mailles. L'avantage essentiel de ce type de maillage est de permettre le calcul simple des flux de masse et de quantité de mouvement pour chaque maille.

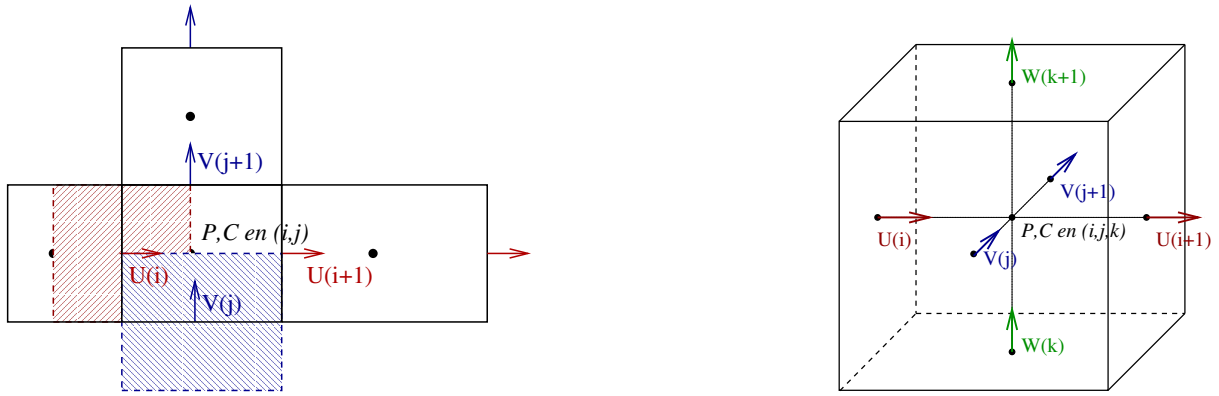


FIG. 2.7 – Maillage décalé en 2D et 3D : position des variables U,V,W,P,C

### Discrétisation temporelle et méthode de projection

Concernant l'avancement en temps de la solution, le schéma numérique assure une précision temporelle d'ordre 2. Les termes advectifs sont résolus à l'aide d'un schéma de type Runge-Kutta à trois pas fractionnaires (RK3). Ce schéma est précis à l'ordre 3 et donne le critère de stabilité  $CFL = \max(|U|, |V|, |W|) \frac{\Delta t}{\Delta x} \leq \sqrt{3}$ . Pour les termes diffusifs, un schéma semi-implicite de type Crank-Nicolson (CN) est utilisé. Il donne une précision d'ordre 2 et assure une stabilité inconditionnelle. Ceci permet de s'affranchir du critère de Reynolds de maille  $\Delta t \leq \min\left(\frac{\Delta x^2 \Delta y^2 \Delta z^2}{\nu(\Delta x^2 \Delta y^2 + \Delta y^2 \Delta z^2 + \Delta z^2 \Delta x^2)/3}\right)$  qui peut devenir très contraignant.

Pour satisfaire la condition d'incompressibilité à chaque pas de temps, la méthode de projection est utilisée (Voir Calmet (1995)). Elle repose sur la décomposition de Helmholtz : tout

champ de vecteur peut être décomposé en une contribution rotationnelle et une contribution potentielle.

On calcule la variable intermédiaire  $\hat{V}_i^{n+1}$  :

$$\frac{\hat{V}_i^{n+1} - V_i^n}{\Delta t} v = - \left( \frac{1}{\rho} \frac{\partial P}{\partial \xi_i} \right)^n v + \text{Gravité, Advection, Diffusion, Capillarité} \quad (2.9)$$

A l'issue du troisième pas fractionnaire (RK3),  $\hat{V}^{n+1}$  contient toute la vorticit  de la solution   l'instant  $n + 1$  mais n'est pas   divergence nulle. Pour assurer la condition d'incompressibilit , une contribution potentielle  $\Phi^{n+1}$  est ajout e telle que :

$$\rho \frac{V^{n+1} - \hat{V}^{n+1}}{\Delta t} = -\nabla \Phi^{n+1} \quad (2.10)$$

Ce potentiel  $\Phi^{n+1}$  est calcul    partir d'une pseudo- quation de Poisson qui d coule de la condition d'incompressibilit  :

$$\nabla \cdot V^{n+1} = 0 \quad \Rightarrow \quad \nabla \cdot \left( \frac{1}{\rho} \nabla \Phi^{n+1} \right) = \frac{1}{\Delta t} \nabla \cdot \hat{V}^{n+1} \quad (2.11)$$

Ainsi, la solution   l'instant  $n + 1$  s' crit :

$$V^{n+1} = \hat{V}^{n+1} + \frac{\Delta t}{\rho} \nabla \Phi^{n+1} \quad (2.12)$$

$$P^{n+1} = P^n + \Phi^{n+1} \quad (2.13)$$

Notons que la pr sence de  $1/\rho$  dans le membre de gauche de la pseudo- quation de Poisson ( quation 2.11) conduit   une matrice dont les termes d pendent du temps et non plus seulement de la g om trie. De plus, puisque  $\rho$  conna t de grandes variations   la travers e de l'interface, la matrice peut  tre tr s mal conditionn e. En  coulement plan ou axisym trique, une m thode directe (algorithme de Cholesky ou la m thode MUMPS d velopp e par [Amestoy et al. \(2000\)](#)) est suffisante pour r soudre l' quation (2.11). Par contre, en  coulement 3D, l'utilisation de la m thode directe est impossible en raison de limitation de stockage, ce qui rend n cessaire l'utilisation d'une m thode it rative, ici faisant appel   la technique du Gradient Conjugu  Pr conditionn  ([Azaiez et al. \(2003\)](#)).

### 2.2.3 La force capillaire

#### Modélisation numérique

La force capillaire est une force localisée à l'interface, dont l'expression dépend de la coordonnée surfacique  $\mathbf{x}_s$  :

$$\mathbf{F}_s(\mathbf{x}_s) = -\kappa(\mathbf{x}_s)\sigma\mathbf{n}(\mathbf{x}_s) \quad \text{avec} \quad \kappa(\mathbf{x}_s) = \nabla_s \cdot \mathbf{n}(\mathbf{x}_s) \quad (2.14)$$

La prise en compte des effets capillaires s'inspire de la méthode CSF (Continuum Surface Force) développée par [Brackbill \*et al.\* \(1992\)](#). Elle consiste à transformer cette force surfacique  $\mathbf{F}_s$  en force volumique  $\mathbf{F}_v$  en étendant son effet sur une région d'épaisseur de l'ordre de quelques mailles.

La définition de cette force volumique est :

$$\lim_{h \rightarrow 0} \int_V \mathbf{F}_v(\mathbf{x}) dV = \int_S \mathbf{F}_s(\mathbf{x}_s) dS \quad (2.15)$$

Or :

$$\int_S \mathbf{F}_s(\mathbf{x}_s) dS = - \int_S \kappa(\mathbf{x}_s)\sigma\mathbf{n}(\mathbf{x}_s) dS \quad (2.16)$$

$$= - \int_V \kappa(\mathbf{x}_s)\sigma\mathbf{n}(\mathbf{x}_s)\delta[\mathbf{n}(\mathbf{x}_s) \cdot (\mathbf{x} - \mathbf{x}_s)] dV \quad (2.17)$$

$$= - \lim_{h \rightarrow 0} \int_V \kappa(\mathbf{n})\sigma\nabla C(\mathbf{x}) dV \quad (2.18)$$

Ainsi, en identifiant les équations [\[2.15\]](#) et [\[2.18\]](#) termes à termes :

$$\mathbf{F}_v(\mathbf{x}) = -\kappa(\mathbf{x})\sigma\nabla C(\mathbf{x}) = -\sigma\nabla \cdot \left( \frac{\nabla C}{\|\nabla C\|} \right) \nabla C \quad (2.19)$$

Le critère de stabilité induit par la discrétisation du terme capillaire s'écrit :

$$\Delta t \leq \sqrt{\frac{(\rho_1 + \rho_2)\Delta x^3}{8\sigma}}$$

#### Courants parasites

Un problème inhérent de cette modélisation est celui des courants parasites ([Lafaurie \*et al.\* \(1994\)](#), [Scardovelli & Zaleski \(1999\)](#)). Son origine provient de la discrétisation du terme capillaire dans la formulation à un fluide. Plus précisément, le terme de courbure de l'interface nécessite une double dérivation de la fonction indicatrice de phase. Celle-ci se traduit par un terme source de vorticit  localis  au voisinage de l'interface induisant un mouvement de fluide

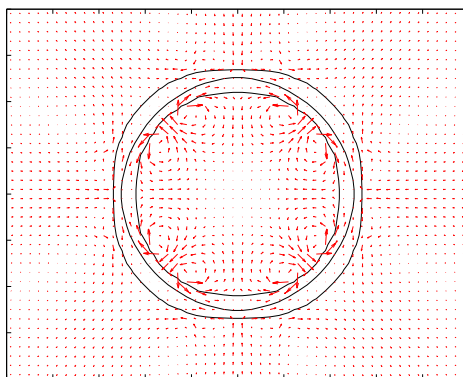


FIG. 2.8 – Exemple de courants parasites dans le cas d'une bulle à l'équilibre -  $C = 0.05 / 0.5 / 0.95$

appelé "courants parasites" comme illustré par la figure (2.8). Le champ de pression et notamment le saut de pression capillaire en est affecté et des pics de pression apparaissent à l'interface.

Ces courants parasites sont en fait présents quelle que soit l'approche numérique développée pour décrire l'interface : méthode VOF avec reconstruction de l'interface (Lafaurie *et al.* (1994), Scardovelli & Zaleski (1999)) ou méthode "front-tracking" (Tryggvason *et al.* (2001a)). Différents remèdes ont été proposés pour réduire la présence de ces courants parasites. La méthode originale CSF propose de lisser le calcul du taux de présence (ou de la densité) pour calculer la courbure alors qu'aucun lissage n'est réalisé pour déterminer la normale. D'autres solutions sont proposées telles qu'une correction via un gradient de pression correcteur ("pressure gradient correction" Popinet & Zaleski (1999)), une écriture sous forme conservative de la force capillaire (Lafaurie *et al.* (1994)) ou une discrétisation conservative de l'énergie dans la méthode du second-gradient (Jamet *et al.* (2002)).

Dans JADIM, pour limiter l'apparition des courants parasites et reproduire correctement le saut de pression à l'interface, l'esprit de la méthode CSF a été conservé (Brackbill *et al.* (1992)). Une étape de lissage est appliquée au taux de présence lors du calcul de la force capillaire dans le but de rendre plus lisse l'interface et donc de minimiser les variations de valeur de la courbure. Le lissage est défini par la loi de pondération suivante (ici écrite en 2D) :

$$\widehat{C}_{i,j}^k = \frac{3}{4}\widehat{C}_{i,j}^{k-1} + \frac{1}{16}\left(\widehat{C}_{i+1,j}^{k-1} + \widehat{C}_{i-1,j}^{k-1} + \widehat{C}_{i,j+1}^{k-1} + \widehat{C}_{i,j-1}^{k-1}\right) \quad (2.20)$$

avec  $\widehat{C}_{i,j}^0 = C_{i,j}$ . La force capillaire est ensuite calculée à partir de la valeur filtrée du taux de présence  $\widehat{C}^N$ . Benkenida (1999) montre que 4 itérations de lissage permettent déjà de diminuer sensiblement l'intensité de ces courants. Nous présenterons dans la suite des tests nouveaux réalisés concernant cette opération de lissage et notamment en introduisant un découplage en terme de lissage des termes de courbure et d'orientation de l'interface.

## Lissage du taux de présence

La force capillaire est calculée à partir du taux de présence lissé  $\widehat{C} = \widehat{C}^N$  issu du filtrage introduit précédemment :

$$\mathbf{F}_v = -\sigma \underbrace{\nabla \cdot \left( \frac{\nabla \widehat{C}}{\|\nabla \widehat{C}\|} \right)}_{\text{courbure}} \underbrace{\nabla \widehat{C}}_{\text{localisation/orientation}} \quad (2.21)$$

Avec cette opération de filtrage, la zone d'application de la force capillaire correspond à l'épaisseur du taux de présence lissé, plus importante que celle du taux de présence non lissé. Cela ne correspond pas à la réalité physique où la force capillaire est une force strictement localisée à l'interface. Il peut être préférable de rendre cette zone d'action limitée à l'épaisseur de l'interface non lissée. Ainsi un compromis est à trouver entre l'obtention du saut de pression capillaire, l'élimination des courants parasites et la minimisation de l'épaisseur numérique capillaire de l'interface. Par exemple, l'étude de la coalescence entre deux gouttes (non traitée ici) nécessiterait de bien limiter la zone d'influence des effets surfaciques à l'épaisseur numérique de l'interface. Si ce n'est pas le cas, lorsque les gouttes sont proches l'une de l'autre, l'interaction capillaire se produit avant même que les gouttes ne se touchent.

Pour limiter la zone d'application de la force capillaire, l'équation (2.21) montre deux termes essentiels : le terme de courbure qui nécessite l'utilisation du lissage pour diminuer les courants parasites et assurer le bon saut de pression capillaire, et le terme d'orientation/localisation qui définit la direction d'application et les zones concernées par ce terme. Nous allons dans la partie suivante de ce chapitre regarder l'effet du lissage de ces deux termes.

### 2.2.4 Transport du taux de présence

Nous venons de présenter le modèle numérique de résolution des équations de Navier-Stokes. Il s'agit maintenant de présenter la résolution de l'équation de transport (purement hyperbolique) du taux de présence :

$$\frac{\partial C(\mathbf{x}, t)}{\partial t} + \mathbf{U}(\mathbf{x}, t) \cdot \nabla C(\mathbf{x}, t) = 0 \quad (2.22)$$

Le schéma numérique utilisé peut être diffusif ou dispersif. Si l'on considère par exemple le transport d'une fonction créneau, un schéma diffusif va déformer l'amplitude du signal : le front du créneau va s'étaler sous l'effet d'une viscosité numérique ; un schéma dispersif déforme en revanche la fréquence du signal : des oscillations numériques apparaissent à proximité du front. Des méthodes numériques s'emploient à limiter ces effets. Les deux grandes classes de schémas sont les schémas de type FCT "Flux Corrected Transport" développés à partir de [Boris & Book \(1973\)](#) et les schémas WENO "Weighted Essentially Non Oscillatory". Au sein du code JADIM, la méthode utilisée pour résoudre cette équation de transport fait partie des méthodes FCT. Nous

en présentons ici les grandes lignes. Le lecteur est renvoyé à [Benkenida \(1999\)](#) pour plus de détails.

L'équation (2.22) est mise sous forme conservative :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial CU}{\partial x} = C \frac{\partial U}{\partial x} \quad (2.23)$$

On discrétise cette équation que l'on intègre par la méthode des volumes finis :

$$\frac{C_i^n - C_i^{n-1}}{\Delta t} + \frac{(CU)_{i+1/2}^{n-1} - (CU)_{i-1/2}^{n-1}}{\Delta x} = C_i^{n-1} \frac{U_{i+1/2}^{n-1} - U_{i-1/2}^{n-1}}{\Delta x} \quad (2.24)$$

Ce qui donne :

$$C_i^n = C_i^{n-1} - (F_{i+1/2}^{n-1} - F_{i-1/2}^{n-1}) + C_i^{n-1} \frac{U_{i+1/2}^{n-1} - U_{i-1/2}^{n-1}}{\Delta x} \Delta t \quad (2.25)$$

où  $F = CU \frac{\Delta t}{\Delta x}$  est le flux à travers l'une des frontières de la maille.

Deux schémas de flux sont utilisés : un flux d'ordre "faible"  $F^{(L)}$  diffusif mais stable et un d'ordre "élevé"  $F^{(H)}$  dispersif mais précis. On parle d'étape "diffusive" pour  $F^{(L)}$  et d'étape "anti-diffusive" pour  $F^{(H)}$ . Le calcul de  $F$  est alors une pondération des flux  $F^{(L)}$  et  $F^{(H)}$  :

$$F_{i+1/2}^{n-1} = m_{i+1/2} F_{i+1/2}^{(H),n-1} + (1 - m_{i+1/2}) F_{i+1/2}^{(L),n-1} \quad (2.26)$$

avec :

$$F_{i+1/2}^{(L),n-1} = \frac{\Delta t}{\Delta x} \frac{C_{i+1}^{n-1} (U_{i+1/2}^{n-1} - |U_{i+1/2}^{n-1}|) + C_i^{n-1} (U_{i+1/2}^{n-1} + |U_{i+1/2}^{n-1}|)}{2} \quad (2.27)$$

$$F_{i+1/2}^{(H),n-1} = \frac{\Delta t}{\Delta x} U_{i+1/2}^{n-1} \left[ \frac{533}{840} (C_{i+1}^{n-1} + C_i^{n-1}) - \frac{139}{840} (C_{i+2}^{n-1} + C_{i-1}^{n-1}) + \frac{29}{840} (C_{i+3}^{n-1} + C_{i-2}^{n-1}) - \frac{1}{280} (C_{i+4}^{n-1} + C_{i-3}^{n-1}) \right] \quad (2.28)$$

Cette méthode permet de transporter la fonction discrète  $C$  de manière à garder au maximum la raideur du front, tout en s'astreignant des problèmes numériques de diffusion ou de dispersion du signal. Cette méthode de résolution de l'équation de transport a fait l'objet de développement en parallèle à ce travail dans le cadre de la thèse de Th. Bonometti ([Bonometti \(2006\)](#)), au sein du Groupe Interface.

Ainsi, le transport de  $C$  est calculé en écrivant le bilan des flux de taux de présence aux facettes de la maille considérée. A noter que sur une paroi, la condition de non-glissement impose une vitesse nulle. Il n'y a donc pas de flux de masse donc de taux de présence entrant ou sortant

au travers d'une paroi pour les travaux réalisés dans ce travail. Il faut aussi souligner que les effets capillaires (expression (2.21)) sont calculés à partir du gradient de  $C$ . C'est cette grandeur à la paroi qui contrôle l'angle fait par l'interface et qu'il faudra imposer comme condition limite.

### 2.2.5 Bilan

A chaque pas de temps, l'algorithme consiste en la résolution du problème en quatre étapes :

1. Résolution de l'équation de transport. On obtient  $C^{n+1}$ .
2. Calcul des propriétés physiques  $\rho^{n+1}$  et  $\mu^{n+1}$ .
3. Résolution de l'équation de bilan de quantité de mouvement, sans les effets capillaires.
4. Calcul des effets capillaires. On obtient  $\hat{V}^{n+1}$ .
5. Méthode de projection pour obtenir la pression  $P^{n+1}$  et la vitesse à divergence nulle  $V^{n+1}$ .

## 2.3 Tests additionnels sur le lissage du terme capillaire

Pour poser le problème du lissage, nous avons fait varier le nombre d'itérations de lissage  $N$  afin d'en étudier l'effet. Nous avons pour cela considéré deux situations simples, l'une statique et l'autre dynamique, pour lesquelles une solution de référence existe. Nous intéressons ici à regarder l'effet du filtrage sur la convergence du saut de pression capillaire à l'interface. La présence et l'importance de l'impact des courants parasites sont exprimées via les valeurs RMS des fluctuations de pression dans la goutte.

### 2.3.1 Cas statique : goutte à l'équilibre

Le premier test que nous avons réalisé concerne une goutte à l'équilibre thermodynamique. On considère une goutte de rayon  $R$  à l'équilibre dans un fluide au repos sans force de pesanteur. La viscosité dynamique et la masse volumique dans la goutte sont notées  $\mu_d, \rho_d$  et dans le fluide extérieur  $\mu_f, \rho_f$ . La tension de surface est notée  $\sigma$ .

Les propriétés des fluides sont  $\rho_d = 1000 \text{ kg.m}^{-3}$  et  $\rho_f = 1 \text{ kg.m}^{-3}$ ,  $\mu_d = 10^{-2} \text{ Pa.s}$  et  $\mu_f = 10^{-5} \text{ Pa.s}$ ,  $\sigma = 0,072 \text{ N.m}^{-1}$ ,  $g = 0 \text{ m.s}^{-2}$  et  $R = 0,01 \text{ m}$ .

Le calcul est axisymétrique. Trois maillages sont étudiés : 10, 20 et 40 mailles pour une distance de  $1R$ . La durée du calcul est limitée à  $2\Delta t$ . Nous souhaitons regarder avec ce cas test très simple l'effet du lissage sur le calcul du saut de pression à l'interface.

## Lissage traditionnel

Dans un premier temps le même lissage est appliqué aux termes de courbure et de localisation/orientation.

La pression moyenne dans la goutte est mesurée de la même manière que [Brackbill et al. \(1992\)](#) :

$$\bar{P}_{cap} = \frac{1}{N_m} \sum_{i,j} \left( P_{i,j} / C_{i,j} > 0,99 \right) \quad (2.29)$$

où  $N_m$  est le nombre de mailles vérifiant la condition sur  $C$ .

La dispersion des mesures est évaluée par un écart-type dimensionnel dont la référence est la pression théorique :

$$RMS = \frac{1}{P_{th}} \sqrt{\frac{1}{N_m} \sum_{i,j} \left( P_{i,j} - P_{th} \right)^2}$$

La pression théorique vaut ici :  $P_{th} = 2\sigma/R = 14.4 Pa$ .

Les résultats sont présentés dans la figure (2.9). On remarque qu'il faut lisser au minimum 10 fois environ pour converger vers la pression théorique. Cependant, on observe que l'écart-type augmente avec le lissage après avoir diminué. On cherche donc à obtenir une solution qui ne se dégrade pas en lissant, et qui reste convergée quelque soit le maillage.

Commençons par déterminer le nombre de lissages nécessaires pour calculer correctement le terme de courbure.

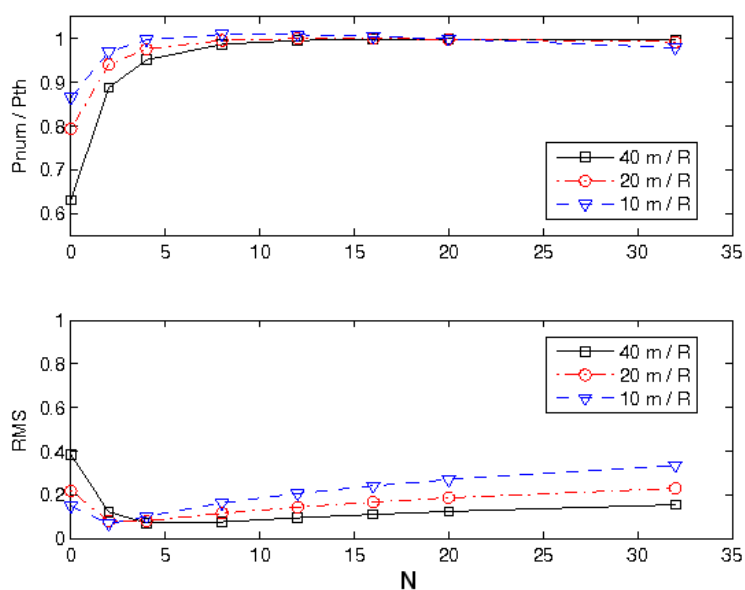


FIG. 2.9 –  $P_{num}/P_{th}$  en haut et erreur RMS en bas pour 3 maillages - Lissage des termes de courbure et de localisation



## Lissage de la courbure

On veut déterminer le nombre optimal d'itérations de lissage  $N_\kappa$  appliqué au taux de présence pour converger vers la courbure théorique.

La courbure numérique est mesurée ainsi :

$$\bar{\kappa}_{num} = \frac{1}{N_m} \sum_{i,j} \left( \kappa_{i,j} / 0.01 < C_{i,j} < 0,99 \right)$$

où  $N_m$  est le nombre de mailles vérifiant la condition sur  $C$ .

Et l'erreur RMS est définie de cette manière :

$$\kappa_{RMS} = \frac{1}{\kappa_{th}} \sqrt{\frac{1}{N_m} \sum_{i,j} \left( \kappa_{i,j} - \kappa_{th} \right)^2}$$

en notant  $\kappa_{th} = 1/R$  la courbure théorique de ce problème. En ce qui concerne la courbure, la figure (2.10) montre qu'elle est correctement calculée à partir de 8 lissages. Cependant il faut 16 lissages pour diminuer l'erreur RMS.

## Mise en œuvre du découplage du lissage

Le découplage du lissage des termes de courbure et de localisation est appliqué. Dorénavant, on note  $N_\kappa$  le nombre d'itérations de lissage appliqué au terme de courbure et  $N_L$  celui appliqué

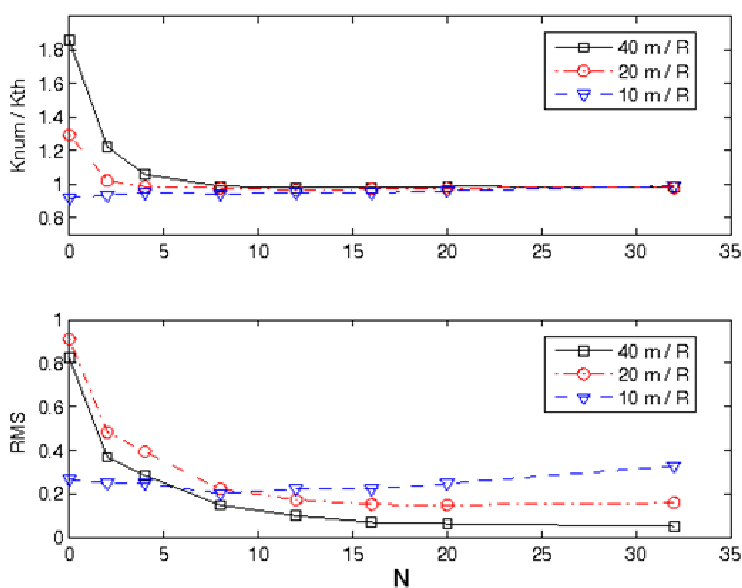


FIG. 2.10 –  $\kappa_{num}/\kappa_{th}$  en haut et erreur RMS en bas pour 3 maillages - Lissage du terme de courbure

au terme de localisation/orientation. L'influence du lissage est à étudier sur quelques cas-tests.

On simule à nouveau le saut de pression capillaire dans une goutte à l'équilibre dans un fluide au repos. Ici, seul varie  $N_\kappa$ . Le terme de localisation/orientation est calculé avec un taux de présence non lissé :  $N_L = 0$ .

Les résultats sont présentés dans la figure (2.11). La pression capillaire est toujours correctement calculée à partir de 10 lissages. Cependant, à la différence de la figure (2.9), l'erreur RMS n'augmente plus. La solution est d'autant plus précise que le lissage  $N_\kappa$  est grand.  $N_\kappa = 16$  semble suffisant.

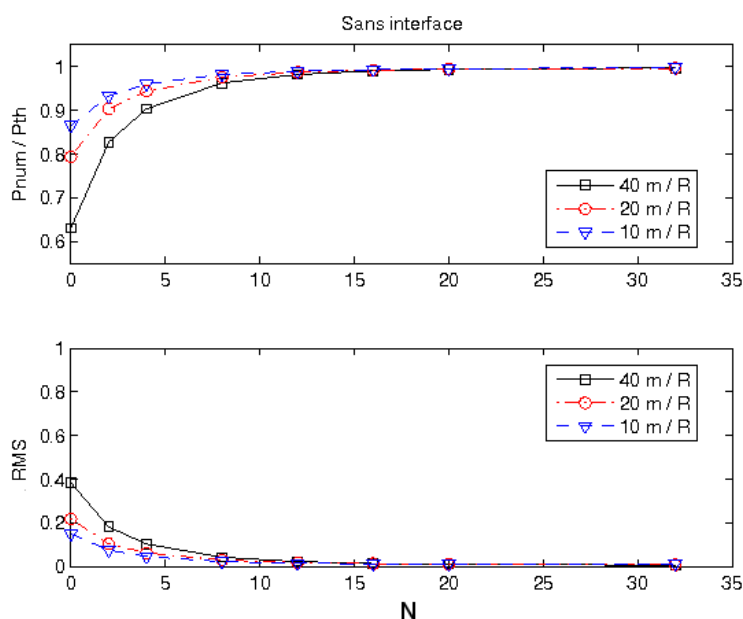


FIG. 2.11 –  $P_{num}/P_{th}$  en haut et erreur RMS en bas pour 3 maillages - Lissage des termes de courbure pour  $N_L = 0$

L'influence du lissage pour le terme de localisation uniquement est maintenant étudiée. Pour le terme de courbure, le lissage est maintenu fixe  $N_\kappa = 16$ . Pour le terme de localisation, on fait varier  $N_L$  : tableau (2.1). On remarque que le calcul de la pression ne connaît pas une amélioration sensible. Cependant, l'erreur RMS double ou triple lorsque le nombre de lissage augmente.

## Bilan

Nous venons de voir que les meilleurs résultats sont obtenus en découplant le lissage de la courbure et celui de la localisation/orientation. Ainsi il revient de ne pas (ou peu) lisser le terme de localisation  $N_L = 0$ , tout en lissant suffisamment le terme de courbure  $N_\kappa = 16$ .

$\frac{P_{num}}{P_{th}} / \text{RMS}$	10mailles / 1R	20mailles / 1R	40mailles / 1R
$N_L = 0$	0,993 / 1,24.10 <sup>-2</sup>	0,992 / 1,33.10 <sup>-2</sup>	0,990 / 1,45.10 <sup>-2</sup>
$N_L = 4$	1,010 / 1,03.10 <sup>-1</sup>	0,999 / 7,27.10 <sup>-2</sup>	0,995 / 4,67.10 <sup>-2</sup>
$N_L = 8$	1,013 / 1,63.10 <sup>-1</sup>	1,001 / 1,15.10 <sup>-1</sup>	0,997 / 7,45.10 <sup>-2</sup>

TAB. 2.1 – Influence du lissage du terme de localisation  $N_L$  pour  $N_\kappa = 16$ 

### 2.3.2 Cas dynamique : ascension d'une bulle dans un fluide au repos

La montée d'une bulle dans un liquide initialement au repos est simulée sur un maillage 2D axisymétrique dans un cas visco-capillaire dans un premier temps, puis dans un cas inertio-capillaire. Ces deux situations se distinguent notamment par le fait que l'interface est fortement déformée dans le premier cas et faiblement déformée dans le second. Cependant dans ces deux situations, la forme de l'interface est un élément essentiel à reproduire correctement pour décrire la bonne dynamique de la bulle. La vitesse d'ascension et la forme de la bulle sont comparées à des études de référence, expérimentales ou numériques. Nous souhaitons étudier ici l'influence du découplage de la force capillaire sur la dynamique d'une particule isolée.

Les paramètres adimensionnels retenus pour décrire ce problème sont ici le nombre de Morton, le nombre d'Eötvös et le nombre de Reynolds :

$$Mo = \frac{g \mu_L^4}{\rho_L \sigma^3} \quad Eo = \frac{\rho_L g d^2}{\sigma} \quad Re = \frac{\rho_L U_{asc} d}{\mu_L} \quad (2.30)$$

#### Situation visco-capillaire

Nous considérons ici la situation visco-capillaire. Les paramètres physiques sont choisis de manière à nous placer dans la situation expérimentale de [Bhaga & Weber \(1981\)](#) très utilisée comme cas de validation des codes VOF. [Bonometti \(2006\)](#) a récemment étudié cette situation dans le but de valider l'outil numérique que nous utilisons. Nous y renvoyons le lecteur pour plus de détails concernant les aspects numériques. Les propriétés des fluides sont :  $\rho_L = 1000 \text{ kg/m}^3$ ,  $\mu_L = 6,35.10^{-1} \text{ Pa.s}$ ,  $\rho_G = 10 \text{ kg/m}^3$ ,  $\mu_G = 6,35.10^{-3} \text{ Pa.s}$ . La tension de surface est  $\sigma = 0,0338 \text{ N/m}$ , la gravité  $g = 9.81 \text{ m.s}^{-2}$  et le diamètre de la bulle  $d = 2R = 0.02 \text{ m}$ . Les nombres sans dimension valent alors  $Mo = 41,1$  et  $Eo = 116$ . Le nombre de Reynolds est calculé a posteriori, avec la vitesse d'ascension de la bulle. Ce nombre est donc un résultat de la simulation. Il est à comparer avec le nombre de Reynolds  $Re \simeq 7,2$  obtenu expérimentalement ([Bhaga & Weber \(1981\)](#)).

Le maillage utilisé dans notre étude comporte 700x140 mailles et le diamètre est décrit par 60 mailles. Le maillage est régulier dans la zone de déplacement de la bulle et croît ensuite de manière arithmétique dans la direction perpendiculaire au mouvement. Ainsi, la frontière

latérale est située à la distance  $5.5D$  du centre de la bulle. La frontière latérale est une condition de symétrie et les frontières horizontales sont des parois.

Le tableau (2.2) présente le nombre de Reynolds, résultat de la simulation, en fonction du découplage du lissage.

	$N_L = 00$	$N_L = 04$	$N_L = 08$	$N_L = 16$	Bhaga & Weber (1981)
Re	7,084	7,081	7,074	7,059	7,2

TAB. 2.2 – Influence du lissage du terme de localisation  $N_L$  pour  $N_\kappa = 16$  dans le cas d'une bulle en ascension dans un régime visco-capillaire.

Nous remarquons que le résultat est très proche de l'observation expérimentale : quelle que soit la valeur de l'itération de lissage, l'erreur relative est inférieure à 2%. Les isocontours du taux de présence sont peu affectés par le nombre d'itération de lissage pour la localisation  $N_L$  comme le montre la figure 2.12. Donc dans ce cas visco-capillaire, l'ascension de la bulle n'est pas affectée par la variation d'itération de lissage concernant le terme de localisation/orientation de la force capillaire.

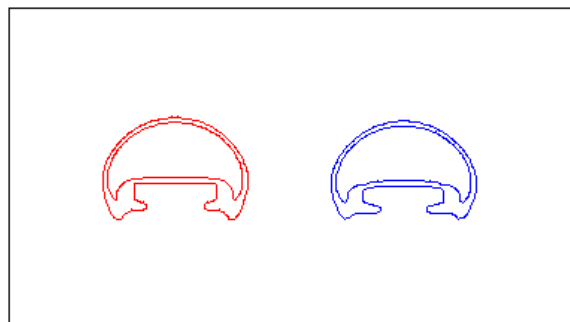


FIG. 2.12 – Isocontours  $C = 0,01$  et  $C = 0,99$  pour une bulle en ascension à  $Re \simeq 7$  avec  $N_L = 00$  (gauche) et  $N_L = 16$  (droite).

### Situation inertio-capillaire

Nous nous intéressons maintenant à l'ascension d'une bulle à grand nombre de Reynolds. La vitesse de la bulle ainsi que sa forme stationnaire sont comparées à une simulation numérique directe (DNS) obtenue avec le module "Boundary fitted" du code JADIM (Adoua (2007)). Dans ce module, le maillage curviligne orthogonal épouse à chaque pas de temps l'interface de la bulle et permet ainsi une résolution fine des effets hydrodynamiques présents près de l'interface.

Les propriétés des fluides sont :  $\rho_L = 1000 \text{ kg/m}^3$ ,  $\mu_L = 1,32 \cdot 10^{-1} \text{ Pa.s}$ ,  $\rho_G = 10 \text{ kg/m}^3$ ,  $\mu_G = 1,32 \cdot 10^{-3} \text{ Pa.s}$ . La tension de surface est  $\sigma = 3,92 \text{ N/m}$ , la gravité  $g = 9.81 \text{ m.s}^{-2}$  et le

diamètre de la bulle  $d = 2R = 0.02 m$ . Les nombres sans dimension valent :  $Mo = 5.10^{-8}$  et  $EO = 1$ . Le nombre de Reynolds est à comparer avec le nombre de Reynolds numérique obtenu par DNS :  $Re \simeq 101,6$ .

Le maillage utilisé dans notre étude est le même que dans l'étude précédente à ceci près que la frontière supérieure est initialement plus haute pour permettre à la bulle d'atteindre son régime stationnaire. Il comporte 900x140 mailles et le diamètre est toujours décrit par 60 mailles.

Le tableau (2.3) présente le nombre de Reynolds, résultat de la simulation, en fonction du découplage du lissage.

	$S_I = 00$	$S_I = 04$	$S_I = 08$	$S_I = 16$	Adoua (2007)
Re	101,5	102,0	102,2	101,9	101,6

TAB. 2.3 – Influence du lissage du terme de localisation  $N_L$  pour  $N_\kappa = 16$  dans le cas d'une bulle en ascension dans un régime inertio-capillaire.

Nous remarquons ici que, comme pour le cas visqueux, nos résultats sont tout à fait concordants avec les résultats de référence. De plus, la dynamique n'est pas modifiée par l'itération de lissage  $N_L$ , et l'interface n'est pas non plus modifiée comme illustré par la figure 2.13.

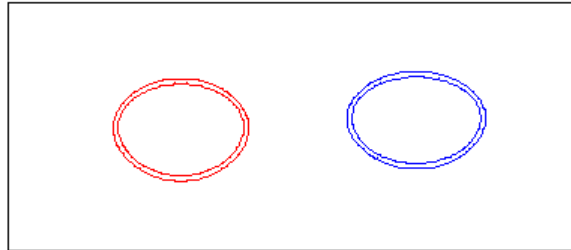


FIG. 2.13 – Isocontours  $C = 0,01$  et  $C = 0,99$  pour une bulle en ascension à  $Re \simeq 101$  avec  $N_L = 0$  (gauche) et  $N_L = 16$  (droite).

### 2.3.3 Synthèse

En conclusion, les tests présentés ici ont permis d'identifier l'effet du découplage de la force capillaire pour des interfaces évoluant loin des parois. Nous avons montré que l'itération de lissage  $N_L$  pour la localisation/orientation de la force capillaire n'a pas d'influence sur la dynamique de la bulle ni sur sa forme. Nous reprendrons ces tests sur l'effet du lissage de la force capillaire et du découplage introduit ici dans des situations de mouillage dans le chapitre suivant.

## 2.4 Conclusion

Ce chapitre a été consacré à la description du code JADIM qui a été utilisé dans le cadre de ce travail. Après une rapide présentation des différentes stratégies numériques développées dans la littérature pour la simulation numérique du mouillage, nous avons décrit l'approche VOF sans reconstruction d'interface implémentée dans JADIM. En complément des tests et validations déjà réalisés dans les études précédentes, une attention toute particulière a été portée sur le calcul de la force capillaire et notamment sur la procédure de lissage utilisée pour limiter les fameux courants parasites inhérents à la discrétisation de la contribution capillaire dans le bilan de quantité de mouvement. Nous avons introduit un lissage découplé du terme de courbure  $\nabla \cdot \left( \frac{\nabla \hat{C}}{\|\nabla \hat{C}\|} \right)$  et du terme de localisation/orientation  $\nabla \hat{C}$  de l'interface. Nous avons montré en considérant deux situations de référence en l'absence de mouillage (une goutte statique et une bulle en ascension) que les meilleurs résultats sont obtenus en lissant le terme de courbure (nombre d'itérations  $N_\kappa \sim 16$ ) pour un lissage du terme de localisation/orientation qui est maintenu nul ( $N_L = 0$ ).



## Chapitre 3

# Modélisation numérique du mouillage

Ce chapitre concerne ici l'implémentation numérique du modèle du mouillage au sein du code JADIM pour pouvoir simuler les phénomènes complexes d'écoulements diphasiques dans les mini-canaux d'une pile à combustible. Nous présentons ici les modèles physiques, les méthodes numériques et les tests de validation concernant les différents éléments essentiels du mouillage, c'est-à-dire la statique d'une ligne triple, la dynamique de cette même ligne triple, ainsi que le phénomène d'hystérésis de l'angle de contact.

### 3.1 Modèle physique

#### 3.1.1 Angle statique

Le mouillage statique correspond par exemple à une goutte posée sur une paroi horizontale à l'équilibre thermodynamique. Au point triple, l'angle formé par l'interface correspond à l'angle statique macroscopique d'équilibre  $\theta_s$  défini par la relation de Young-Dupré (figure 3.1) :

$$\sigma_{SG} - \sigma_{SL} = \sigma \cos \theta_s \quad (3.1)$$

où  $\sigma_{SG}$  et  $\sigma_{SL}$  sont les énergies de surface associées aux interfaces Solide/Gaz et Solide/Liquide.

#### 3.1.2 Angle dynamique

Si l'on incline progressivement la paroi, la goutte se met en mouvement à partir d'un certain angle d'inclinaison. La dynamique de l'angle de contact dépend de la vitesse de l'interface sur la paroi. En 2D, il n'y a pas d'ambiguïté pour définir la vitesse  $\mathbf{V}$  du point triple : c'est la vitesse de l'interface tangentielllement à la paroi. En 3D, l'interface décrit une ligne sur la paroi : c'est la ligne triple. La vitesse  $\mathbf{V}$  de la ligne triple, qui est la vitesse de l'interface dans le plan de la paroi, peut alors avoir une composante normale et une composante tangentielle à cette ligne



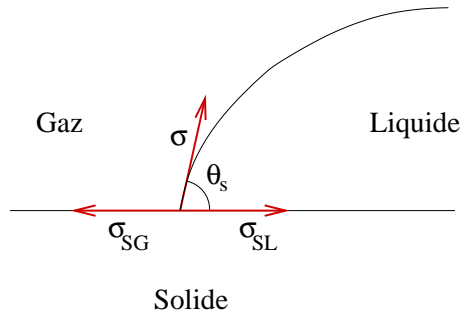


FIG. 3.1 – Définition de l'angle de contact à l'équilibre  $\theta_s$

triple, respectivement suivant  $n_{//}$  et  $n_t$  (cf. figure 3.2). Comme le montre la figure 3.2,  $n_{//}$  est le vecteur unitaire normal à l'interface et parallèle à la paroi,  $n_p$  et  $n_t$  sont l'un perpendiculaire et l'autre tangentiel à la paroi. Seule la composante normale, suivant  $n_{//}$ , contribue à la dynamique d'avancée ou de recul de la ligne triple sur la paroi. Nous noterons dans la suite  $U_{cl}$  la composante normale à la ligne triple.

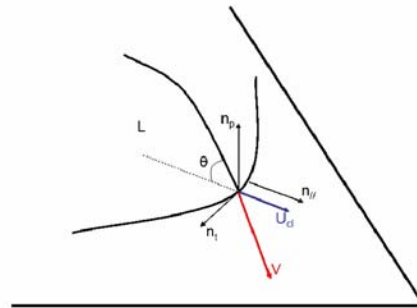


FIG. 3.2 – Définition de la vitesse  $\mathbf{V}$  de la ligne triple et de sa composante normale à la ligne triple  $U_{cl}$ .  $\mathbf{n}_p$  est la normale de la paroi,  $\mathbf{n}$  est la normale de l'interface et  $\theta$  l'angle de contact

L'angle de contact dépend de la composante  $U_{cl}$  de la vitesse de déplacement de la ligne triple : c'est l'angle dynamique. Plus précisément, il dépend du nombre capillaire  $Ca = \mu U_{cl} / \sigma$  qui compare les effets visqueux qui s'opposent au mouvement aux effets moteurs capillaires. Cet angle est donc différent de l'angle statique (figure 3.3).

Différents modèles physiques tentent de décrire la dynamique de l'angle de contact. Ils diffèrent entre eux par les échelles de longueur qu'ils considèrent et par le moyen utilisé pour lever le paradoxe du point triple. Ce paradoxe décrit une limite du modèle des milieux continus : l'application de la condition de non-glissement fait apparaître une dissipation visqueuse infinie au point triple qui interdit tout mouvement. Ce problème est qualifié de paradoxal puisqu'en contradiction avec la réalité. Pour lever cette divergence, deux grands modèles existent, le modèle hydrodynamique et le modèle de cinétique moléculaire. Une présentation de ces deux théories

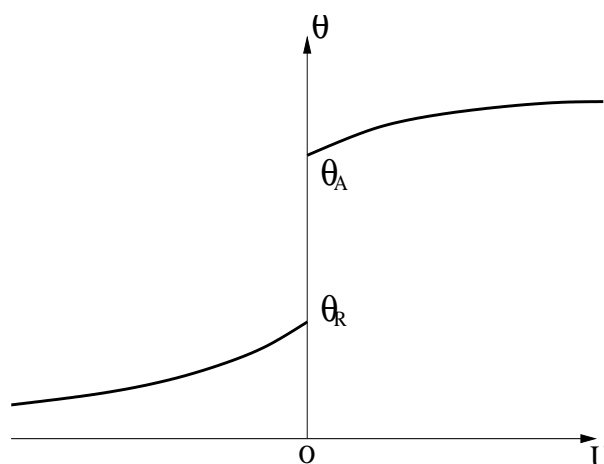


FIG. 3.3 – Relation entre la vitesse du point triple  $U_{cl}$  et l'angle de contact  $\theta$

peut être trouvée chez [Blake \(2006\)](#).

Le modèle hydrodynamique a été développé par [Voinov \(1976\)](#), [Cox \(1986\)](#) et Dussan ([Ngan & Dussan \(1989\)](#), [Dussan \*et al.\* \(1991\)](#)). Il est nommé de différentes manières par les auteurs. Nous le nommerons ici "modèle hydrodynamique" ou "modèle de Dussan". Ce modèle propose de remplacer cette condition de non-glissement par une condition de glissement, en faisant remarquer qu'à l'échelle du point triple, le modèle des milieux continus n'est plus valable. Ainsi, une échelle de coupure  $l_m$  est introduite correspondant à la longueur de glissement. Cette échelle vient limiter la dissipation visqueuse et lui redonne une valeur finie. Cette longueur  $l_m$  est celle de l'échelle moléculaire où le modèle des milieux continus n'est plus valide :  $l_m = 1nm$ . De plus, à cette échelle, il est supposé que l'angle microscopique  $\theta_m$  est contrôlé par les forces intermoléculaires et correspond donc à l'angle statique  $\theta_s$  :  $\theta_m = \theta_s$ .

Entre cette région microscopique ( $\sim l_m$ ) et la région macroscopique ( $\sim l_c = \sqrt{\sigma/(\rho_L - \rho_G)g}$ , longueur capillaire), le modèle de Dussan considère une région intermédiaire  $r$  comme zone de raccord entre les deux régions précédentes : figure (3.4).

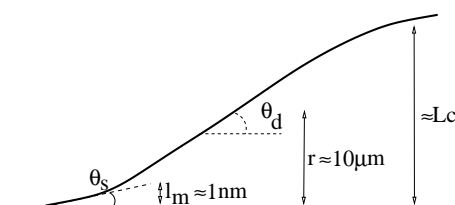


FIG. 3.4 – Différentes échelles de longueur dans le cas du mouillage partiel

Cette zone  $r$  est de l'ordre de  $r = 10\mu m$ , qui est l'échelle à laquelle l'angle de contact, appelé alors "angle de contact apparent", peut être expérimentalement mesuré. [Ngan & Dussan \(1989\)](#) ont montré analytiquement et confirmé expérimentalement que l'angle de contact y est constant

et indépendant des échelles macroscopiques (qui peuvent être liées à la géométrie du système). Il dépend de la vitesse du point triple  $U_d$  par le biais du nombre capillaire  $Ca = \mu_L U_d / \sigma$  et de la longueur de glissement  $l_m$ . Plusieurs études expérimentales (Ngan & Dussan (1989), Dussan *et al.* (1991), Marsh *et al.* (1993) et Shen & Ruth (1998)) ont confirmé que cette région intermédiaire est de l'ordre de  $r \sim 10\mu m$  et que la longueur de glissement est de l'ordre de  $l_s \sim 1nm$ . Ce modèle définit la valeur de l'angle dynamique  $\theta_d$  par la relation (3.2) :

$$\theta_d(r) = g^{-1} \left[ g(\theta(l_m)) + Ca \ln \frac{r}{l_m} \right] \quad \text{avec} \quad g(\theta') = \int_0^{\theta'} \frac{\theta - \sin \theta \cos \theta}{2 \sin \theta} d\theta \quad (3.2)$$

Une forme plus simple du modèle, limitée à  $\theta_d < 3\pi/4$ , dérive de l'expression précédente :

$$\theta_d^3 = \theta_s^3 + 9 Ca \ln \left( \frac{r}{l_m} \right) \quad \text{avec} \quad \theta_d < \frac{3\pi}{4} \quad (3.3)$$

Dussan (1976) a montré que le type de condition de glissement (condition de Navier ou autres) n'a pas d'influence sur l'angle dynamique. Celui-ci est insensible à la physique de la région microscopique. Seuls importent deux informations sur cette région : la longueur de glissement  $l_m$  et l'angle microscopique  $\theta_m$  égal à  $\theta_s$ .

Enfin, le modèle hydrodynamique repose sur les hypothèses d'un écoulement de Stokes dans la région intermédiaire  $Re = \rho_L U_d r / \mu_L \ll 1$  et un nombre capillaire  $Ca = \mu_L U_d / \sigma \ll 1$ . Chen *et al.* (1995) et Lavi & Marmur (2004) ont montré expérimentalement que le modèle n'est plus prédictif lorsque  $Ca > 0,1$ .

Une approche différente est celle du modèle de cinétique moléculaire, basée sur la théorie cinétique des liquides, et développée par T. D. Blake (Blake & Haynes (1969) et de Ruijter *et al.* (1999a)). Ici, la dissipation macroscopique d'origine visqueuse est écartée et l'attention est portée sur le mécanisme de déplacement des molécules de liquide contre la paroi, dans la région microscopique du point triple. La dissipation vient du mouvement relatif des molécules associé au déplacement du point triple. Ce modèle ne considère que deux régions principales : une microscopique, d'échelle moléculaire, et une macroscopique, où l'angle de contact est mesuré. La relation entre l'angle dynamique est la vitesse de déplacement du point triple s'écrit :

$$\theta_d^2 = \theta_s^2 + \left( \frac{v N k T}{2\pi f L_m \hbar} \right) Ca \quad (3.4)$$

où  $k$  est la constante de Boltzmann,  $T$  la température absolue,  $L_m$  la longueur d'un déplacement d'une molécule,  $\hbar$  la constante de Planck réduite,  $f$  la fréquence de déplacement,  $N$  le nombre de sites d'adsorption par unité de surface et  $v$  est appelé le volume de l'écoulement moléculaire ("molecular flow volume").

Enfin, mentionnons également deux modèles plus récents et confrontés depuis peu à des résultats expérimentaux dont Lavi & Marmur (2004) et LeGrand *et al.* (2005). Le modèle de

de Gennes ([de Gennes \(1986\)](#)) considère la région du point triple comme un coin ou un prisme formant un angle  $\theta_d$ . A partir d'un bilan énergétique entre les forces capillaires au point triple et la dissipation visqueuse, et en utilisant deux échelles de coupure, une longueur microscopique  $a$  et une longueur macroscopique  $b$ , il obtient :

$$\theta_d \left( \theta_d^2 - \theta_s^2 \right) = 6Ca \ln \left( \frac{b}{a} \right) \quad (3.5)$$

Quant au modèle de Shikmurzaev ([Shikmurzaev \(1997a\)](#)), il considère le déplacement d'une ligne de contact comme relevant du phénomène plus général de la formation-disparition d'une interface. Il développe un modèle qui prend en compte ce phénomène lors du mouvement de la ligne de contact ainsi que la présence de gradients de tension de surface. La relation entre l'angle dynamique et la vitesse du point triple s'écrit :

$$\cos \theta_d = \cos \theta_s - \frac{2[\rho_{2e}^s + \rho_{1e}^s u_0(\theta_d)]}{(1 - \rho_{1e}^s)[(1 + \rho_{2e}^s/V^2)^{1/2} + 1]} \quad (3.6)$$

où  $\rho_{1e}^s$  et  $\rho_{2e}^s$  sont les densités de surface à l'équilibre de l'interface liquide-gaz et de l'interface liquide-solide,  $u_0(\theta_d)$  est la vitesse tangentielle à l'interface liquide-gaz dans le référentiel en mouvement avec la ligne triple et  $V$  est la vitesse sans dimension de la ligne triple.

Le choix du modèle d'angle dynamique à implémenter au sein du code JADIM est guidé par l'approche physique qui a conduit aux équations résolues par le code ainsi qu'aux échelles accessibles par le code. Le modèle hydrodynamique décrit la dynamique de l'angle dynamique à l'échelle intermédiaire  $r \simeq 10\mu m$ , alors que le modèle de Blake se situe à l'échelle des molécules. Aussi nous choisissons d'implémenter le modèle hydrodynamique de Dussan, ce qui revient ici à imposer l'angle apparent. Le modèle de de Gennes peut également être choisi. Une comparaison de ces deux modèles sera à entreprendre ultérieurement.

### 3.1.3 Hystérésis de l'angle de contact

Lorsque l'on incline progressivement la paroi sur laquelle est posée une goutte, celle-ci ne se met pas immédiatement en mouvement. L'angle de contact à l'avant augmente progressivement jusqu'à atteindre une valeur limite qui correspond à la mise en mouvement du point triple. Cet angle limite est l'angle d'avancée  $\theta_A$ . A l'arrière, l'angle diminue progressivement jusqu'à atteindre l'angle de recul  $\theta_R$ , et l'interface recule. La différence entre ces 2 angles correspond à l'hystérésis de l'angle de contact. L'origine physique vient de la rugosité de la paroi et de son inhomogénéité chimique.

$$U_{cl} < 0 \quad \Rightarrow \quad \theta_d(U_{cl}) < \theta_R \quad (3.7)$$

$$U_{cl} = 0 \quad \Rightarrow \quad \theta_R \leq \theta_d(U_{cl}) \leq \theta_A \quad (3.8)$$

$$U_{cl} > 0 \quad \Rightarrow \quad \theta_A < \theta_d(U_{cl}) \quad (3.9)$$

où  $U_{cl}$  est la vitesse normale de la ligne triple (cf. figure 3.2).

La complexité du problème tridimensionnel provient de ce que ces 3 conditions peuvent être vérifiées en différents points d'une même ligne de contact. La figure (3.5) montre un schéma illustrant ceci en montrant la répartition des angles de contact pour une goutte en mouvement sur un plan incliné. Le long de la ligne de contact de recul, l'angle est un angle dynamique, inférieur

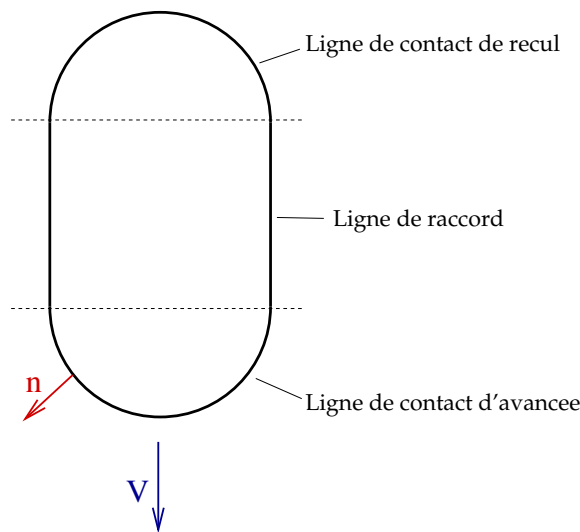


FIG. 3.5 – Représentation schématique d'une goutte en mouvement sur un plan incliné (vue en coupe)

à l'angle de recul  $\theta_R$ . Le long de la ligne d'avancée, l'angle est également un angle dynamique, supérieur à l'angle d'avancée  $\theta_A$ . Ces deux lignes sont reliées par une ligne de raccord où l'angle varie continuellement entre  $\theta_R$  à l'arrière et  $\theta_A$  à l'avant correspondant à une vitesse  $U_{cl}$  nulle. On y retrouve ainsi les trois conditions (3.7), (3.8) et (3.9), c'est-à-dire que l'angle varie le long de la ligne triple, rendant plus complexe sa prise en compte numérique.

Rappelons que, pour la pile à combustible, les fluides en présence sont l'eau et l'air ou l'hydrogène. Il faut noter le manque de données disponibles dans la littérature concernant les angles statiques et l'hystérésis dans le cas de ces fluides. Podgorski (2000) a mesuré les angles de recul et d'avancée pour une goutte d'eau posée sur une feuille de polyacrylate et Mathieu (2003) pour une goutte posée sur de l'acier. Les valeurs des angles statiques sont présentées dans le tableau (3.1).

Nous avons donc été amené à réaliser une série de mesure de ces angles pour les matériaux constituant les canaux d'une pile à combustible. Ce travail expérimental fait l'objet du chapitre 4.

Matériau	Angle de recul $\theta_R$	Angle d'avancée $\theta_A$
Polyacrylate	$30^\circ \pm 5^\circ$	$100^\circ \pm 5^\circ$
Acier	$20^\circ \pm 10^\circ$	$80^\circ \pm 15^\circ$

TAB. 3.1 – Angles statiques de recul et d'avancée pour le cas eau/air.

### 3.1.4 Conséquence de l'hystérésis pour la pile à combustible

L'hystérésis va jouer un rôle essentiel dans l'alimentation en eau des canaux. En effet, rappelons le mécanisme physique d'introduction de liquide dans les mini-canaux d'une pile à combustible (Yang *et al.* (2004)). Les mini-canaux présentent la particularité d'être de section carrée ou rectangulaire avec des parois de mouillabilité différente. L'une est hydrophobe et du liquide est introduit dans le canal au travers de cette paroi. Les trois autres sont hydrophiles. A mesure que le liquide est introduit dans le canal, des gouttes se forment sur la paroi hydrophobe. Elles grossissent jusqu'à toucher une des parois hydrophiles pour ensuite y migrer.

Le tableau (3.2) présente un résumé des mécanismes physiques à reproduire pour simuler les différentes étapes de l'évolution d'une goutte dans ces conditions.

Etapes	Mécanismes à reproduire
Croissance de la goutte	Angle statique - Hystérésis
Contact avec une paroi hydrophile et mise en mouvement	Angle statique $\Rightarrow$ Angle dynamique Hystérésis
Migration sur une paroi hydrophile	Passage d'une arête à mouillabilité différente Angle dynamique
Etat d'équilibre	Angle dynamique $\Rightarrow$ Angle statique Angle statique - Hystérésis

TAB. 3.2 – Correspondance entre les étapes de l'évolution d'une goutte d'eau dans un mini-canal d'une pile et les mécanismes physiques à reproduire par simulation numérique.

Pour décrire les différentes étapes de ce phénomène, il est indispensable de parvenir à simuler correctement les éléments du mouillage décrits précédemment (angle statique, angle dynamique et hystérésis). De plus, la mise en mouvement ainsi que l'arrêt du mouvement se traduisent par le passage de l'angle statique à l'angle dynamique et inversement. Enfin, le passage d'une arête ou d'un coin formé de parois de mouillabilité différente doit pouvoir être simulé.

## 3.2 Implémentation numérique

Nous présentons maintenant l'implémentation numérique du modèle physique de mouillage concernant les trois éléments essentiels : mouillage statique, mouillage dynamique et hystérésis de l'angle de contact.

### 3.2.1 Imposer l'angle de contact

La première étape du travail numérique a été de proposer une méthode permettant d'imposer à l'interface un angle quelconque  $\theta$ .

Rappelons que, pour l'approche numérique utilisée, les effets capillaires se manifestent via la présence dans le bilan de quantité de mouvement de la force capillaire qui s'exprime : :

$$\mathbf{F}_{v,(i,j,k)} = -\sigma \kappa_{(i,j,k)} \nabla C_{(i,j,k)} \quad (3.10)$$

avec  $\kappa_{(i,j,k)} = \nabla \cdot \mathbf{n}_{(i,j,k)}$  et  $\mathbf{n}_{(i,j,k)} = -\frac{\nabla C_{(i,j,k)}}{\|\nabla C_{(i,j,k)}\|}$

Il faut par ailleurs imposer à la normale à l'interface  $\mathbf{n}_{(i,j,k)}$  de respecter l'angle  $\theta$  au niveau de la ligne triple :

$$\mathbf{n}_{(i,j,k)} = \sin \theta \cdot \mathbf{n}_{\parallel} + \cos \theta \cdot \mathbf{n}_p \quad (3.11)$$

où  $\mathbf{n}_{\parallel}$  est le vecteur unitaire sur la paroi, perpendiculaire à la ligne triple et  $\mathbf{n}_p$  le vecteur unitaire perpendiculaire à la paroi.

En pratique nous introduisons une valeur du taux de présence à la paroi  $C_p$  qui est utilisée pour le calcul du gradient de  $C$  à l'interface de manière à respecter la condition (3.11) dans le calcul des gradients nécessaires au calcul de l'effet capillaire (3.10). A noter que la formulation a été généralisée aux maillages curvilignes orthogonaux. Par exemple, en maillage cartésien 3D, pour une ligne triple se déplaçant sur le plan  $xOy$ , l'expression devient pour un maillage régulier suivant  $z$  :

$$C_{p(i,j)}(\theta) = \frac{9C_{(i,j,k)} - C_{(i,j,k+1)}}{8} + \frac{3}{8} \Delta z \frac{\cos \theta}{\sin \theta} \sqrt{(\partial_x C)^2 + (\partial_y C)^2} \quad (3.12)$$

Ainsi, la normale à l'interface  $\mathbf{n}$  prend l'orientation voulue au point triple, ce qui se traduit par une force capillaire motrice lorsque l'angle effectif au point triple est différent de l'angle d'équilibre imposé.

Attention,  $C_p$  n'est pas à proprement parler la condition à la limite du taux de présence  $C$ . Nous avons fait remarquer plus haut que cette condition à la limite n'intervient pas dans le transport de  $C$ . En effet, elle est uniquement utilisée dans l'équation de Navier-Stokes, dans l'étape de calcul de la force capillaire.

### 3.2.2 Angle statique

A l'aide de la procédure présentée ci-dessus, il est maintenant possible d'imposer un angle statique constant pour une interface sur une paroi. Des validations et calculs ont été réalisés en 2D et 3D. Le chapitre 6 consacré à la migration 3D de goutte dans un canal utilise un angle de contact constant.

### 3.2.3 Angle dynamique

L'implémentation de l'angle dynamique, et de l'hystérésis, a été dans un premier temps effectuée et validée en deux dimensions. Le fait de ne pas reconstruire l'interface et donc de travailler avec une interface d'une épaisseur de quelques mailles a rendu délicate l'implémentation en trois dimensions comme nous le verrons plus loin.

L'implémentation numérique de l'angle de contact dynamique consiste à utiliser la condition à la paroi sur le taux de présence  $C_{p(i,j)}(\theta_d)$  à l'aide de l'équation (3.12). Il faut pour cela calculer l'angle dynamique  $\theta_d$  qui dépend de la vitesse normale de la ligne triple  $U_{cl}$ . En 2D, nous avons décidé d'imposer la même valeur de l'angle sur toutes les mailles concernées par la présence de la ligne triple ( $0 < C < 1$ ). Pour cela, il faut mesurer le déplacement de l'isocontour  $C = 0,5$  entre deux pas de temps pour obtenir la vitesse de déplacement  $U_{cl,C=0,5}$ . L'angle dynamique  $\theta_d$  est ensuite calculé et imposé sur toute la zone du point triple.

En résumé, la démarche revient à calculer :

1. La vitesse parallèle à la paroi  $U_{cl}$  en  $C = 0,5$ .
2. L'angle dynamique, à partir du modèle de Dussan,  $\theta_d$ . Il est calculé grâce à la relation (3.2) en utilisant les expressions pour  $g$  et  $g^{-1}$  calculée par Mathieu (2003) :

$$g(x) \approx \frac{1}{9}x^3 - 0,00183985x^{4,5} + 1,845823 \cdot 10^{-6}x^{12,258487} \quad (3.13)$$

$$g^{-1}(x) \approx (9x)^{1/3} + 0,0727387x - 0,0515388x^2 + 0,00341336x^3 \quad (3.14)$$

3. La condition à la paroi du taux de présence  $C_{p(i,j)}$ . On utilise la relation (3.12) en remplaçant  $\theta_{eq}$  par  $\theta_d(U_{cl})$ .

La généralisation pour une implémentation 3D est discutée dans la suite de ce chapitre.

Une contrainte sur l'échelle des mailles à la paroi vient du modèle de Dussan. La distance caractéristique de la région intermédiaire au point triple est  $r \sim 10 \mu m$ . Nous devons respecter cette valeur pour l'implémentation de ce modèle dans le code JADIM. Une conséquence numérique



concerne alors la taille des mailles à la paroi qui doivent être du même ordre de grandeur :

$$\Delta x = \Delta y = \Delta z \sim 10 \mu m$$

### 3.2.4 Hystérésis de l'angle de contact

Rappelons que l'angle est dit statique lorsque la vitesse normale de la ligne triple  $U_{cl}$  est nulle (figure 3.5). Pour reproduire l'hystérésis de l'angle de contact, la méthode consiste à déterminer l'angle  $\theta_0$  qui annule la quantité de mouvement parallèle à la paroi et perpendiculaire à la ligne triple. Si l'angle  $\theta_0$  est compris dans l'intervalle  $[\theta_R, \theta_A]$ , l'angle  $\theta_0$  est imposé et il n'y aura pas de mouvement perpendiculaire à la ligne triple. Par contre si  $\theta_0$  n'est pas compris dans l'intervalle  $[\theta_R, \theta_A]$ , la force capillaire n'est plus capable de retenir le mouvement normal à la ligne triple dû aux autres forces en présence : l'angle au point triple n'est alors plus statique mais dynamique. Il est alors calculé à l'aide du modèle de Dussan que nous avons retenu pour cette étude. A noter que l'utilisation d'un autre modèle (par exemple celui de de Gennes) est immédiate.

Cette méthode impose un certain ordre dans l'algorithme mis en place pour le calcul du bilan de quantité de mouvement. Il faut en effet que le terme capillaire dans l'équation soit résolu en dernier. A défaut d'avoir une expression directe qui calcule l'angle en fonction de la force capillaire, celui-ci est déterminé par une procédure itérative à l'aide d'une méthode de Newton qui converge rapidement (5 à 10 itérations).

Comme pour l'angle dynamique, l'implémentation numérique de l'hystérésis a été effectuée et validée en deux dimensions. L'implémentation réalisée en trois dimensions est discutée plus loin.

### 3.2.5 Bilan

Dans l'algorithme du code, après l'étape de Runge-Kutta, vient l'étape de la force capillaire où se situe le calcul du mouillage. Ce calcul suit l'algorithme résumé dans le tableau (3.3).

### 3.2.6 Implémentation en 3D

Pour implémenter les modèles d'angle dynamique et d'hystérésis en 3D, nous avons implémenté les approches présentées ci-dessus.

Il faut avoir en tête que dans le code JADIM l'interface n'est pas reconstruite et a de ce fait une épaisseur non nulle de l'ordre de 2 à 3 mailles. En 3D, l'étape "hystérésis / angle dynamique" est appliquée à chacune des mailles pour lesquelles  $0 < C < 1$ . Cette étape affecte à chaque maille

Etape 1	
Méthode itérative : Calcul de $\theta_0$ qui annule la QdM	
Etape 2	
Si $\theta_0 \in [\theta_R, \theta_A]$ - $\theta_s = \theta_0$ - Calcul de $C_p(\theta_s)$ : éq. (3.12)	Si $\theta_0 \notin [\theta_R, \theta_A]$ - Calcul de $\theta_{dyn}$ (modèle de Dussan) - Calcul de $C_p(\theta_{dyn})$ : éq. (3.12)

TAB. 3.3 – Résumé de l'algorithme de simulation du mouillage

concernée par la ligne triple un angle qui est, soit dans l'intervalle de l'hystérésis, soit en-dehors et donc calculé avec le modèle de Dussan.

Cette étape est très lourde en temps de calcul puisqu'elle est appliquée en chaque maille à la paroi où le taux de présence est tel que  $0 < C < 1$ . Ensuite et surtout, elle ne donne pas l'effet attendu puisque nous avons observé que le champ de vitesse obtenu  $U_{cl,(i,j,k)}$  présente des oscillations entre deux mailles voisines. Cela donne des angles de contact calculés qui varient brutalement entre 2 mailles sans signification physique. Cela se traduit pour une goutte 3D par la ligne triple parcourue d'oscillations comme illustrées par la figure 3.6. Notons que la longueur caractéristique de ces oscillations correspond à l'échelle de la maille.

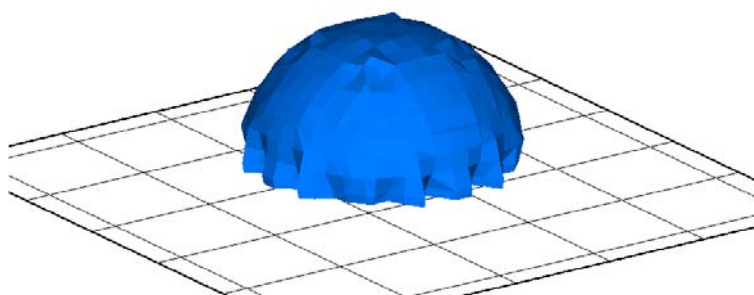


FIG. 3.6 – Goutte dans un champ de gravité avec prise en compte de l'hystérésis en 3D : Des oscillations sont présentes à la ligne triple et l'hystérésis n'est pas correctement reproduite.

Une piste est à creuser qui consiste à étendre en 3D l'étape actuellement développée en 2D. Il s'agit de déterminer les mailles contenant la ligne triple associée à l'isocontour  $C_{i,j,k} = 0,5$ , d'y calculer la vitesse normale à cet isocontour  $U_{cl,C=0,5}$  et d'imposer cette vitesse comme vitesse de déplacement de la ligne triple pour toutes les cellules se trouvant dans la direction imposée par  $\nabla C|_{C=0,5}$  avec  $0 < C < 1$ . Cette étape rejoint les développements apportés par T. Bonometti

(Bonometti (2006)) pour améliorer le transport du taux de présence dans le code JADIM. Pour conserver la raideur du front de l'interface, il modifie localement la vitesse dans la zone  $0 < C < 1$  pour qu'en chaque cellule la vitesse soit celle du point  $C = 0,5$ . Les cellules modifiées doivent se trouver sur la même ligne de courant que  $C = 0,5$ . Dans notre cas, il s'agit d'adapter cette méthode aux mailles proches de la paroi et d'utiliser non plus les lignes de courant mais les directions parallèles à  $\nabla C|_{C=0,5}$ .

Cette méthode permettrait également de réduire le temps de calcul par un facteur 2 à 5 puisque l'étape itérative "hystérésis / angle dynamique" se fait pour chaque maille correspondant à la direction  $\nabla C$  en  $C = 0,5$  et non plus en chaque maille de l'épaisseur numérique de l'interface ( $0 < C < 1$ ). Pour le moment, cette piste reste à implémenter et à étudier en 3D.

### 3.3 Exemples de validation

Quelques tests de validation sont présentés. Ils concernent la statique du mouillage, l'hystérésis de l'angle de contact et la dynamique du mouillage. Dans un premier temps, trois tests concernant la statique du mouillage permettront d'analyser l'influence des deux paramètres numériques du lissage  $N_\kappa$  et  $N_L$  introduits au chapitre précédent, et de vérifier que la physique est correctement simulée. Nous pourrions ainsi fixer les valeurs optimales à  $N_\kappa$  et  $N_L$  pour ensuite étudier des cas d'hystérésis d'angle de contact et de dynamique du mouillage.

Les tests sur l'angle statique donnent un exemple de validation pour une situation de retour à l'équilibre. L'interface est initialement hors équilibre. L'effet capillaire permet le retour à l'équilibre. Celui-ci est atteint lorsque l'angle au point triple correspond à l'angle d'équilibre imposé  $\theta_{eq}$ . Durant le mouvement, nous considérons que  $\theta = \theta_{eq}$ . Le modèle d'hystérésis est ensuite testé sur une goutte déformée par un écoulement de Couette en régime de Stokes. Les résultats sont comparés à des simulations de référence utilisant la méthode des intégrales de frontière (Schleizer & Bonnecaze (1999)), ainsi qu'à des études récentes faites avec un modèle de suivi d'interface (Spelt (2005)). Enfin, la dynamique du mouillage d'une goutte placée hors de l'équilibre est étudiée et comparée à des résultats expérimentaux.

#### 3.3.1 Goutte à l'équilibre sur une paroi hydrophile

Ce cas-test est important pour la pile puisque l'eau alimente le canal au travers d'une paroi poreuse hydrophobe. Une goutte d'eau apparaît dont la forme générale dépend directement de l'angle d'équilibre puisque la capillarité domine totalement la gravité ( $EO = 0,05$ ). La simulation présentée ici montre qu'une goutte placée hors d'équilibre tend correctement vers la situation d'équilibre. Les résultats obtenus sont comparés à la solution analytique.

### Présentation

On considère à l'instant initial un demi-disque 2D de liquide de rayon  $R_{init}$  posé sur une surface plane horizontale. Un angle d'équilibre constant  $\theta_{eq}$  est imposé au point triple. Comme l'angle effectif est initialement de  $\theta_{init} = 90^\circ$ , différent de l'angle d'équilibre imposé, l'interface de la goutte se trouve dans une situation hors équilibre. Une force capillaire résulte de ce déséquilibre. Elle est créée dans la région du point triple pour imposer à l'interface de prendre localement l'angle d'équilibre.

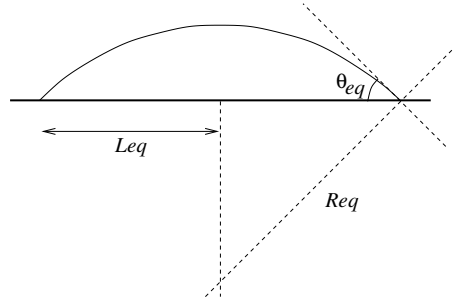


FIG. 3.7 – Interface d'une goutte à l'équilibre avec un angle de contact  $\theta_{eq}$

A l'équilibre, la goutte forme un arc de cercle dont le rayon de courbure et la distance du point triple sont données par les relations géométriques :

$$R_{th,eq} = R_{init} \left( \frac{\pi}{2(\theta_{eq} - \sin(\theta_{eq}) \cos(\theta_{eq}))} \right)^{1/2} \quad (3.15)$$

$$L_{th,eq} = R_{init} \sin(\theta_{eq}) \left( \frac{\pi}{2(\theta_{eq} - \sin(\theta_{eq}) \cos(\theta_{eq}))} \right)^{1/2} \quad (3.16)$$

La pression dans la goutte est alors déduite de la relation de Laplace en deux dimensions :

$$P_{th,eq} = \frac{\sigma}{R_{th,eq}} \quad (3.17)$$

Les données physiques utilisées sont les suivants : le rayon initial de la goutte est de  $R = 0.01m$ , l'angle constant imposé  $\theta_{eq} = 50^\circ$ , pour le liquide  $\rho_L = 1000 \text{ kg.m}^{-3}$  et  $\mu_L = 10^{-2} \text{ Pa.s}$ , pour le gaz  $\rho_G = 1 \text{ kg.m}^{-3}$  et  $\mu_G = 10^{-5} \text{ Pa.s}$ , la tension de surface  $\sigma = 0,072 \text{ N.m}^{-1}$  et la gravité  $g = 0 \text{ m.s}^{-2}$ .

Ainsi, dans ces conditions, la longueur au centre est  $L_{th,eq} = 1.557 \text{ cm}$ , le rayon de courbure  $R_{th,eq} = 2.032 \text{ cm}$  et la pression capillaire  $P_{th,eq} = 3.543 \text{ Pa}$ .

### Paramètres numériques

Le maillage est 2D plan cartésien dont 40 mailles environ décrivent  $1R$ . Le domaine physique  $0,03\text{ m} \times 0,03145\text{ m}$  est décrit par  $120 \times 70$  mailles. Par symétrie, seule la moitié droite de la goutte est simulée. Le maillage est régulier suivant  $Ox$  et irrégulier suivant  $Oy$ , obéissant à une progression arithmétique. Ainsi en  $y_{min}$ ,  $\Delta y/\Delta x \simeq 0.5$  et en  $y_{max}$ ,  $\Delta y/\Delta x \simeq 2.4$ . Le lissage de la courbure  $N_\kappa$  est fixé à 16 itérations. On fait varier le lissage du taux de présence pour le terme d'intensité  $N_L$ .

### Résultats

L'angle final  $\theta_{opt}$  est calculé en minimisant l'écart par la méthode des moindres carrés entre le "dôme" de l'interface et celui d'un arc de cercle dont l'angle est  $\theta_{opt}$ . Cela permet de connaître l'angle au point triple sans avoir à le mesurer localement mais en mesurant son influence macroscopique (forme globale de l'interface) : figure (3.8).

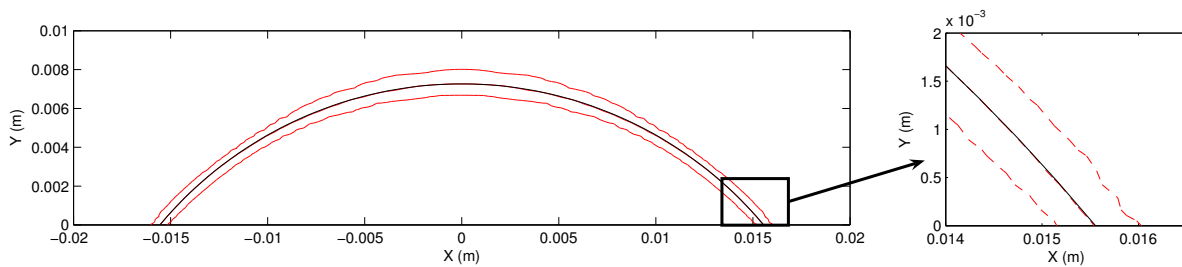


FIG. 3.8 – A gauche : Goutte à l'équilibre pour  $N_\kappa = 16$  et  $N_L = 16$  - A droite : Agrandissement de la région du point triple - Simulation ( $C = 0.05/0.5/0.95$  en pointillé) et interface théorique (trait continu) -  $\theta_{eq} = 50^\circ$  et  $\theta_{opt} = 50.0^\circ$

Les résultats sur l'effet du lissage  $N_L$  sont présentés dans le tableau (3.4). L'erreur relative reste dans tous les cas très faible mais on remarque que le fait d'augmenter  $N_L$  améliore les résultats. La goutte atteint la position d'équilibre en formant au point triple un angle correspondant à l'angle d'équilibre imposé, ici  $50^\circ$ . Nous décidons, sous réserve d'études ultérieures, de lisser 16 fois le taux de présence pour le calcul de l'intensité et pour celui de la courbure  $N_\kappa = N_L = 16$ .

### 3.3.2 Flaque à l'équilibre sur une paroi hydrophobe

#### Présentation

Nous considérons maintenant une goutte à l'équilibre sur une paroi hydrophobe dans un champ de gravité. A l'instant initial un demi-disque de liquide est posé sur une surface plane horizontale. L'angle initial au point triple est donc  $\theta_{init} = 90^\circ$ . A la paroi, un angle d'équilibre  $\theta_{eq}$  est imposé

Lissage	$L_{num}$ (cm)	$P_{num}$ (Pa)	$\theta_{opt}$
$N_\kappa = 16$ $N_L = 00$	1,526 (2,0%)	3,680 (3,9%)	51,9°
$N_\kappa = 16$ $N_L = 04$	1,543 (0,9%)	3,555 (0,3%)	51,0°
$N_\kappa = 16$ $N_L = 08$	1,546 (0,7%)	3,509 (1,0%)	50,7°
$N_\kappa = 16$ $N_L = 16$	1,557 (0,0%)	3,401 (4,0%)	50,0°

TAB. 3.4 – Résultats de l'étude d'une goutte à l'équilibre en l'absence de gravité sur une paroi hydrophile  $\theta_{eq} = 50^\circ$

et diffère de  $\theta_{init}$ . Ainsi, deux forces mettent en mouvement la goutte : la gravité tend à diminuer l'épaisseur de la goutte tandis que la force capillaire tend à minimiser l'aire interfaciale tout en maintenant l'angle au point triple égal à  $\theta_{eq}$ .

Suivant la direction de l'étalement, l'équilibre entre le gradient de pression et la force capillaire permet d'écrire l'épaisseur théorique  $e_{th}$  :

$$e_{th} = 2l_c \sin(\theta_{eq}/2) \quad (3.18)$$

où  $l_c$  est la longueur capillaire qui correspond à l'équilibre entre la gravité et la capillarité.

Les données physiques utilisées sont les suivants : le rayon initial de la goutte est de  $R = 0.01m$ , l'angle constant imposé  $\theta_{eq} = 150^\circ$ , pour le liquide  $\rho_L = 1000 \text{ kg.m}^{-3}$  et  $\mu_L = 10^{-1} \text{ Pa.s}$ , pour le gaz  $\rho_G = 1 \text{ kg.m}^{-3}$  et  $\mu_G = 10^{-5} \text{ Pa.s}$ , la tension de surface  $\sigma = 0,148 \text{ N.m}^{-1}$  et la gravité  $g = 9,81 \text{ m.s}^{-2}$ .

Ainsi, dans ces conditions, le nombre d'Eötvös est  $Eu = 6,6$ , la longueur capillaire  $l_c = 3,88 \text{ mm}$  et l'épaisseur théorique de la flaque  $e_{th} = 7,50 \text{ mm}$ .

### Paramètres numériques

Le maillage est 2D plan cartésien dont 40 mailles environ décrivent  $1R$ . Le domaine physique  $0,03m \times 0,03145m$  est décrit par  $120 \times 70$  mailles. Par symétrie, seule la moitié droite de la goutte est simulée. Le maillage est régulier suivant  $Ox$  et irrégulier suivant  $Oy$ , obéissant à une progression arithmétique. Ainsi en  $y_{min}$ ,  $\Delta y/\Delta x \simeq 0.5$  et en  $y_{max}$ ,  $\Delta y/\Delta x \simeq 2.4$ . Le lissage de la courbure  $N_\kappa$  est fixé à 16 itérations. On fait varier le lissage du taux de présence pour le terme d'intensité  $N_L$ .

### Résultats

Les résultats sont présentés dans le tableau (3.5). L'épaisseur finale de la flaque  $e_{num}$  y est indiquée ainsi que l'erreur relative par rapport à l'épaisseur théorique  $e_{th}$ . L'épaisseur numérique

de l'interface dans la région du point triple est également indiquée, et mesure l'écart en nombre de mailles entre les isovaleurs  $C = 0.01$  et  $C = 0.99$ . Rappelons que l'interface s'étend initialement sur 3 à 4 mailles. La lissage  $S_I$  a une influence importante sur la diffusion de l'interface au point triple. 4 itérations ( $S_I = 4$ ) suffisent à la diminuer fortement.

Lissage	$e_{num}$ (cm) / err rel (%) Epaisseur interface (mailles)
$N_\kappa = 16$ $N_L = 00$	7,15 / 4,7% 16
$N_\kappa = 16$ $N_L = 04$	7,19 / 4,1% 9
$N_\kappa = 16$ $N_L = 08$	7,20 / 4,0% 7
$N_\kappa = 16$ $N_L = 16$	7,22 / 3,7% 7

TAB. 3.5 – Résultats de l'étude d'une goutte à l'équilibre dans un champ de gravité sur une paroi hydrophobe  $\theta_{eq} = 150^\circ$  ( $e_{th} = 7,50\text{ mm}$ )

La figure (3.9) présente l'interface de la flaque à l'équilibre. La forme de la flaque est correctement décrite. On retrouve notamment le fait que la gravité devient dominante vis à vis de la capillarité à une distance du point triple de l'ordre de la longueur capillaire. Cet effet se manifeste par le changement de courbure : la gravité aplatit l'interface.

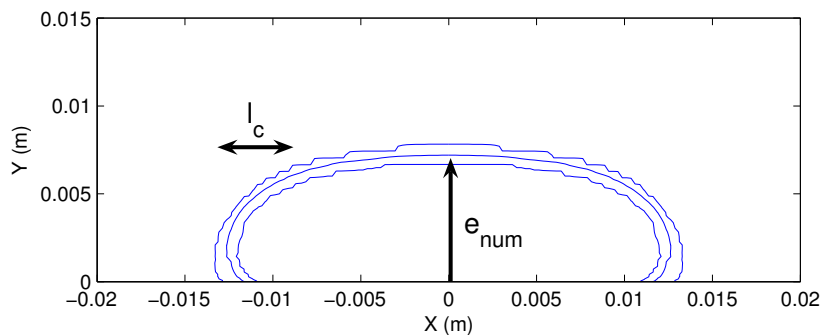


FIG. 3.9 – Goutte à l'équilibre dans un champ de gravité sur une paroi hydrophobe  $\theta_{eq} = 150^\circ$  pour  $N_\kappa = 16$  et  $N_L = 16$

### 3.3.3 Capillaire avec deux parois de mouillabilités différentes

#### Présentation

Nous simulons un milieu diphasique entre deux parois horizontales de mouillabilité différente, distantes d'une hauteur  $H$ . Au temps initial, l'interface est verticale et forme des angles droits avec les parois. Le liquide est à gauche de l'interface. La paroi supérieure est mouillante ( $\theta_{eq,sup} = 30^\circ$ ) tandis que la paroi inférieure est non-mouillante ( $\theta_{eq,inf} = 120^\circ$ ). L'interface se trouve donc dans une position hors d'équilibre : elle va évoluer jusqu'à former avec les parois les deux angles d'équilibre imposés.

Les données physiques utilisées sont les suivants : la hauteur est de  $H = 0.001m$ , les angles imposés  $\theta_{eq,sup} = 30^\circ$  et  $\theta_{eq,inf} = 120^\circ$ , pour le liquide  $\rho_L = 1000 kg.m^{-3}$  et  $\mu_L = 10^{-2} Pa.s$ , pour le gaz  $\rho_G = 1 kg.m^{-3}$  et  $\mu_G = 10^{-5} Pa.s$ , la tension de surface  $\sigma = 0,072 N.m^{-1}$  et la gravité  $g = 0 m.s^{-2}$ .

Ainsi, dans ces conditions de gravité nulle, la capillarité est la seule force qui s'exerce. On peut donc comparer nos résultats avec le résultat analytique où l'interface décrit un arc de cercle avec les angles imposés comme conditions aux limites. Ainsi, le saut de pression capillaire s'écrit :

$$\Delta P_{th} = \frac{\sigma}{R} = (\cos(\theta_{eq,sup}) + \cos(\theta_{eq,inf})) \frac{\sigma}{H} \quad (3.19)$$

où  $R$  est le rayon de courbure de l'interface. L'écart  $\Delta L$  entre la position du point triple inférieur  $L_{inf}$  et celle du point triple supérieur  $L_{sup}$  s'écrit :

$$\Delta L_{th} = L_{sup} - L_{inf} = \frac{\sin(\theta_{eq,inf}) - \sin(\theta_{eq,sup})}{\cos(\theta_{eq,inf}) + \cos(\theta_{eq,sup})} H \quad (3.20)$$

ce qui donne pour les paramètres physiques considérés  $\Delta P_{th} = 26,4 Pa$  et  $\Delta L_{th} = 0.001 m$ .

#### Paramètres numériques

Le maillage utilisé est 2D cartésien régulier. Le domaine de calcul  $0,004 m \times 0,001 m$  est décrit par  $240 \times 60$  mailles. Le lissage de la courbure  $N_\kappa$  est fixé à 16 itérations. On fait varier le lissage du taux de présence pour le terme d'intensité  $N_L$ .

#### Résultats

Les résultats des simulations numériques peuvent être comparés aux données analytiques : l'écart entre les deux points triples  $\Delta L_{num}$ , le saut de pression capillaire  $\Delta P_{num}$  ainsi que les angles aux points triples  $\theta_{opt,inf}$  et  $\theta_{opt,sup}$ . L'épaisseur numérique de l'interface aux points triples est également donnée. Elle est définie comme étant le nombre de mailles contenues entre les limites  $C = 0.01$  et  $C = 0.99$ . Concernant les angles aux points triples  $\theta_{opt}$ , ils sont obtenus en



minimisant l'écart entre l'interface numérique prise en  $C = 0.5$  et un arc de cercle dont les angles aux parois sont  $\theta_{opt,inf}$  et  $\theta_{opt,sup}$ . La méthode des moindres carrés est utilisée. Ainsi les angles sont calculés sans avoir à les mesurer localement. Ils sont déduits de leur influence globale sur l'interface.

Le tableau (3.6) présente les résultats. Augmenter le nombre d'itérations  $N_L$  revient à diminuer les erreurs relatives. Les angles mesurés sont très proches des angles d'équilibre. La diffusion numérique diminue également avec  $N_L$ . A partir de  $N_L = 8$ , l'épaisseur numérique de l'interface correspond à l'épaisseur initiale.

Lissage	$\Delta L_{num}$ (mm)	$\Delta P_{num}$ (Pa)	Angles		Epaisseur interf inf / sup
			$\theta_{opt,inf}$	$\theta_{opt,sup}$	
$N_\kappa = 16$ $N_L = 00$	0.831 (16.9%)	29.13 (10.6%)	113.9°	33.5°	11 / 6 mailles
$N_\kappa = 16$ $N_L = 04$	0.843 (15.7%)	28.40 (7.8%)	115.0°	33.6°	6 / 4 mailles
$N_\kappa = 16$ $N_L = 08$	0.872 (12.8%)	29.45 (11.8%)	115.3°	31.7°	3 / 4 mailles
$N_\kappa = 16$ $N_L = 16$	0.874 (12.6%)	29.92 (13.5%)	115.8°	31.5°	2 / 4 mailles

TAB. 3.6 – Résultats de l'étude d'un liquide à l'équilibre entre 2 parois de mouillabilité différente - Les données entre parenthèses correspondent à l'erreur relative. ( $\theta_{eq,sup}=30^\circ$  /  $\theta_{eq,inf}=120^\circ$ )

La figure (3.10) montre l'interface à l'équilibre pour le cas  $S_\kappa = 16$  et  $S_I = 16$ . L'arc de cercle qui minimise l'écart avec l'interface est également présenté. Cette méthode permet de déduire les angles qui contrôlent la forme globale de l'interface.

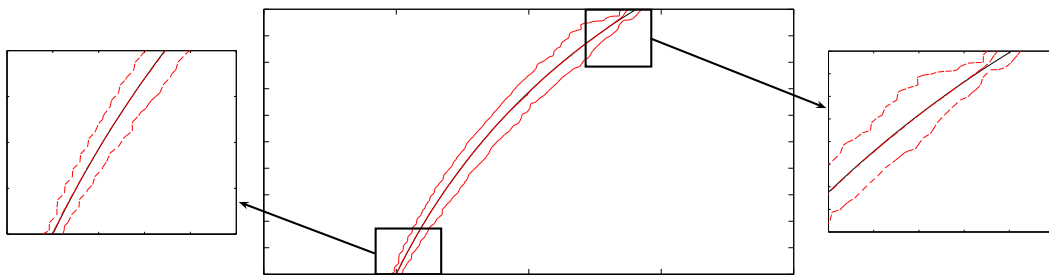


FIG. 3.10 – Interface liquide-gaz à l'équilibre entre 2 parois de mouillabilités différentes pour  $N_\kappa = 16$  et  $N_L = 16$  - Le liquide à gauche et gaz à droite - En pointillé : simulation numérique. En trait plein : interface théorique

## Bilan

Ces 3 études précédentes (goutte, flaque et capillaire) ont permis de valider le modèle de

mouillage statique. Les résultats obtenus sont en très bon accord avec les valeurs théoriques. L'étude paramétrique du lissage de la force capillaire ( $N_\kappa$  et  $N_L$ ) a également été fait. Le terme de courbure doit être suffisamment lissé : on choisit de fixer  $N_\kappa = 16$ . Le terme d'intensité nécessite également un certain nombre d'itérations de lissage. On recommande pour l'étude du mouillage  $N_L = 16$ . Cependant, cette valeur n'est pas universelle et ce paramètre nécessiterait des études supplémentaires, notamment dans le cas délicat de connexion d'interfaces (coalescence de gouttes).

### 3.3.4 Goutte sur une paroi horizontale dans un champ de gravité

Nous souhaitons maintenant poursuivre notre série de cas-tests de validation en considérant la forme d'une goutte posée sur une paroi horizontale. On note  $\theta$  l'angle de mouillage statique. La goutte a pour forme initiale une demi-sphère. Sous l'effet du mouillage et de la gravité la forme de la goutte évolue de sorte qu'à l'équilibre l'angle avec la paroi soit l'angle de mouillage  $\theta$ . La goutte étant entourée de gaz, sa forme à l'équilibre ne dépend que de l'angle  $\theta$  et du nombre d'Eötvös qui compare l'action de la gravité et celle de la tension de surface :

$$Eo = \frac{\rho_L g R_0^2}{\sigma}$$

où  $\rho_L$  est la masse volumique du liquide,  $g$  le champ de gravité,  $R_0$  le rayon initial de la demi-sphère et  $\sigma$  est la tension de surface.

On introduit l'épaisseur  $H$  de la goutte comme étant la distance maximale entre l'interface et la paroi.

Pour  $Eo \ll 1$ , la forme est contrôlée par la tension de surface et la goutte est une calotte sphérique qui fait l'angle  $\theta$  avec la paroi. Il est alors possible de déterminer géométriquement l'épaisseur de la goutte :

$$H_0 = R_0(1 - \cos\theta) \sqrt{\frac{\pi}{2(\theta - \sin\theta\cos\theta)}} \quad (3.21)$$

Pour  $Eo \gg 1$ , la tension de surface ne peut plus résister à l'étalement imposé par la gravité. Elle prend alors la forme d'une flaque dont l'épaisseur est proportionnelle à la longueur capillaire :

$$H_\infty = 2 \sqrt{\frac{\sigma}{\rho_L g}} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad (3.22)$$

La forme de la goutte est obtenue numériquement pour une large gamme de nombre d'Eötvös variant des situations contrôlées par la tension de surface ( $Eo \ll 1$ ) jusqu'aux situations de flaque ( $Eo \gg 1$ ). L'évolution de l'épaisseur de la goutte est reportée en fonction nombre d'Eötvös sur la figure 3.11 pour une paroi hydrophile ( $\theta = 50^\circ$ ) et sur la figure 3.12 pour une paroi hydrophobe ( $\theta = 130^\circ$ ). Les résultats numériques sont dans ces deux situations de mouillage en

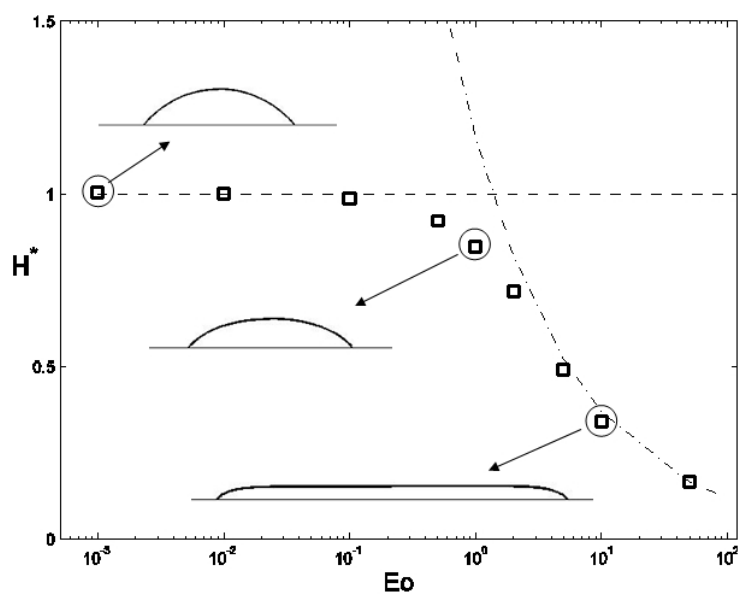


FIG. 3.11 – Epaisseur adimensionnelle  $H^* = H/H_0$  d'une goutte au repos sur une surface hydrophile ( $\theta = 50^\circ$ ).  $\square$  : simulations numériques, - - - - eq. (3.21), - . - . - eq. (3.22)

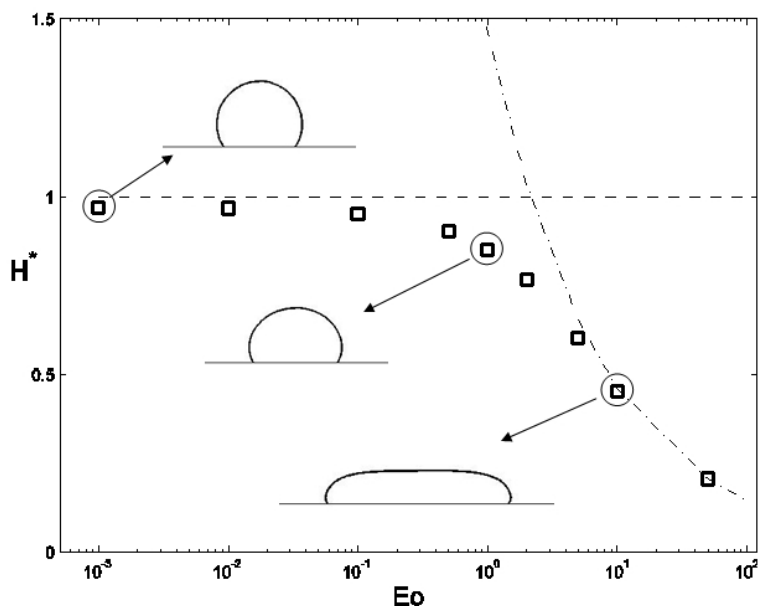


FIG. 3.12 – Epaisseur adimensionnelle  $H^* = H/H_0$  d'une goutte au repos sur une surface hydrophobe ( $\theta = 130^\circ$ ).  $\square$  : simulations numériques, - - - - eq. (3.21), - . - . - eq. (3.22)

très bon accord avec les deux solutions asymptotiques présentées ci-dessus. Comme attendu la transition entre la sphère et la flaque est observée pour  $Eo = O(1)$  lorsque les effets de tension de surface et de gravité s'équilibrent.

### 3.3.5 Hystérésis de l'angle de contact

Dans ce cas-test, l'objectif est de valider la modélisation de l'hystérésis implémentée dans le code JADIM. Ici nous nous limiterons au cas en deux dimensions et nous considérons donc la dynamique des deux points triples, avant et arrière d'une goutte. De manière à compléter les études précédentes sur l'influence des paramètres numériques, nous considérerons ici l'influence des paramètres d'itération de lissage de la force capillaire  $N_\kappa$  et  $N_L$ .

#### Présentation

La déformation d'une goutte dans un écoulement rampant est un phénomène qui a été l'objet de quelques études par simulation numérique. Le fait que l'équation à résoudre soit l'équation de Stokes a permis l'utilisation de la méthode des intégrales de frontières. Les gouttes considérées sont 2D ou 3D et l'écoulement est soit un écoulement de Couette soit un écoulement de Poiseuille. [Spelt \(2005\)](#) utilise une méthode de suivi d'interface avec une approche Level-Set. Pour valider sa méthode, il la compare aux résultats obtenus par [Schleizer & Bonnecaze \(1999\)](#) par intégrales de frontière. Pour valider nos simulations, nous choisissons nous aussi de nous référer à [Schleizer & Bonnecaze \(1999\)](#) et [Spelt \(2005\)](#).

Nous considérons une goutte 2D dans un écoulement de Couette (voir la fig.3 de [Schleizer & Bonnecaze \(1999\)](#)). Initialement, la goutte est circulaire et l'angle de contact est  $\theta = 60^\circ$  (figure 3.13). La viscosité et la densité des fluides sont égales :  $\mu_L = \mu_G = \mu$  et  $\rho_L = \rho_G = \rho$ . A la différence de [Schleizer & Bonnecaze \(1999\)](#) qui ont résolu l'équation de Stokes, nous résolvons l'équation de Navier-Stokes. Nous calculerons le nombre de Reynolds pour vérifier que nous sommes dans le même régime d'écoulement. Les nombres adimensionnels du problème sont le nombre capillaire et en plus pour nous le nombre de Reynolds. En se plaçant à l'échelle de la goutte, nous définissons les nombres ainsi :

$$Ca = \frac{\mu U_p h / H}{\sigma} \quad Re = \frac{\rho U_p h^2 / H}{\mu}$$

où  $U_p$  est la vitesse de la paroi supérieure,  $H$  la hauteur du canal et  $h$  la hauteur initiale de la goutte. La surface initiale de la goutte est  $A = 0,5$  où les longueurs sont adimensionnées par la demie-hauteur du canal  $H/2$ . On considère trois nombres capillaires  $Ca = 0,05, 0,1$  et  $0,2$ .

#### Paramètres numériques

On considère une goutte posée dans un canal horizontal. La paroi supérieure se déplace de

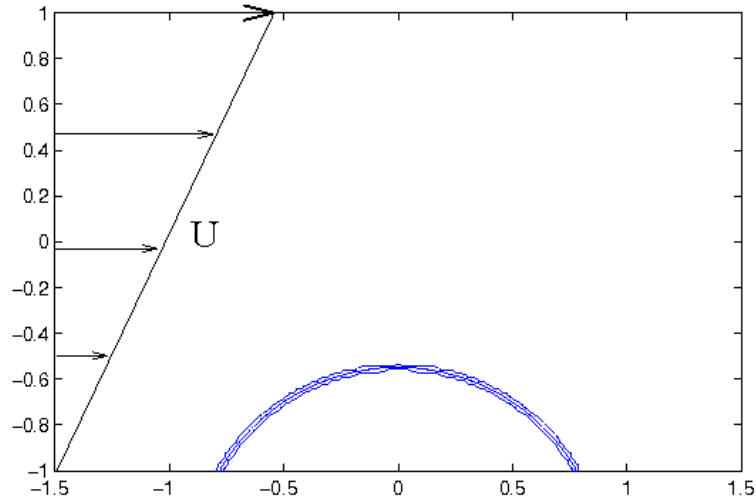


FIG. 3.13 – Goutte posée dans un canal 2D plan. Le profil initial de la goutte est représenté par les isocontours  $C = 0,05$ ,  $C = 0,5$  et  $C = 0,95$ . Les longueurs sont adimensionnées par la demie-hauteur du canal  $H/2$ .

manière à induire un écoulement de Couette. Le maillage est régulier et est tel que la hauteur de la goutte contient 20 mailles :  $h = 20\Delta y = 20\Delta x$ . Le champ de vitesse est initialisé dans tout le domaine.

### Résultats

Pour évaluer l'écart de nos résultats aux résultats de [Schleizer & Bonnecaze \(1999\)](#), on mesure l'erreur RMS en comparant la hauteur de points de l'interface prise à  $C = 0,5$  à la hauteur des mêmes points de l'interface de [Schleizer & Bonnecaze \(1999\)](#) :

$$RMS = \frac{1}{H/2} \sqrt{\frac{1}{N} \sum_1^N (h_{C=0,5} - h_{SB})^2}$$

où  $N$  est le nombre de points choisis pour décrire la surface. On présente les valeurs de l'erreur RMS dans le tableau 3.7. Cependant, la valeur de la hauteur de ces points considérés est obtenue à l'aide d'un logiciel d'extraction de données. Or ce logiciel génère par lui-même des erreurs, un 'bruit' qu'il faut quantifier. La valeur de l'erreur pour  $Ca = 0$ , c'est-à-dire pour une interface prenant la forme d'un arc de cercle, permet de quantifier l'erreur initiale qui donne  $RMS = 0,33\%$  pour  $Ca = 0$ .

### Influence du lissage

L'influence des deux paramètres de lissage est évaluée en comparant les profils de goutte obtenus aux résultats de [Schleizer & Bonnecaze \(1999\)](#). Trois intensités de vitesse de paroi sont

testées et présentées sous forme de nombre capillaire. La tableau (3.7) résume les résultats. Le nombre de Reynolds  $y$  est calculé et confirme que nous sommes bien dans un écoulement de Stokes. Les profils de goutte de nos simulations comparés au profil de [Schleizer & Bonnecaze \(1999\)](#) sont donnés dans la figure (3.14) pour les paramètres  $N_\kappa = 12/N_L = 6$ .

err (%)	$Ca = 0,05 / Re = 0,01$	$Ca = 0,10 / Re = 0,02$	$Ca = 0,15 / Re = 0,03$
$N_\kappa = 06 \times N_L = 06$	0,43%	0,49%	6,55%
12 x 06	0,55%	0,97%	6,24%
12 x 12	0,60%	1,45%	6,29%
16 x 06	0,56%	1,31%	5,77%
16 x 16	0,52%	1,48%	6,30%

TAB. 3.7 – Influence des paramètres de lissage  $N_\kappa$  et  $N_L$  sur le profil de goutte. Comparaison avec [Schleizer & Bonnecaze \(1999\)](#) pour 3 nombres capillaires.

Les résultats pour  $Ca = 0,05$  et  $Ca = 0,10$  donnent des résultats très concordants quelques soient les paramètres de lissage. Notons toutefois que les valeurs  $N_\kappa = N_L = 6$  donnent l'écart le plus faible au profil de référence. En ce qui concerne  $Ca = 0,15$ , l'erreur est plus importante mais reste acceptable. La différence essentielle est localisée au point triple de recul.

En conclusion de l'évaluation de l'influence des paramètres de lissage, nous avons vu que  $N_\kappa = N_L = 6$  donnent les meilleurs résultats. Cependant, nous avons montré que le saut de pression capillaire d'une goutte au repos est correctement décrit à partir de 12 itérations de lissage pour la courbure ( $N_\kappa = 12$ ). Nous choisissons alors de fixer le lissage à 12 pour la courbure ( $N_\kappa = 12$ ) et 6 pour la zone d'application ( $N_L = 6$ ).

### Influence du maillage

L'influence du maillage sur le profil de goutte est étudiée. Les résultats obtenus sont comparés à la solution de référence ([Schleizer & Bonnecaze \(1999\)](#)). Trois maillages sont testés pour lesquels la hauteur initiale de la goutte  $h$  est décrite par 10, 20 ou 30 mailles. Le tableau 3.8 donne les résultats. Suite aux tests précédents, le nombre d'itérations pour le lissage sont  $N_\kappa = 12$  et  $N_L = 6$ .

err (%)	$Ca = 0,05$	$Ca = 0,10$	$Ca = 0,15$
$h = 10\Delta y$	1,40%	4,22%	7,50%
$h = 20\Delta y$	0,55%	0,97%	6,24%
$h = 30\Delta y$	0,64%	1,00%	5,82%

TAB. 3.8 – Influence du maillage sur le profil de goutte. Comparaison avec [Schleizer & Bonnecaze \(1999\)](#) pour 3 nombres capillaires.

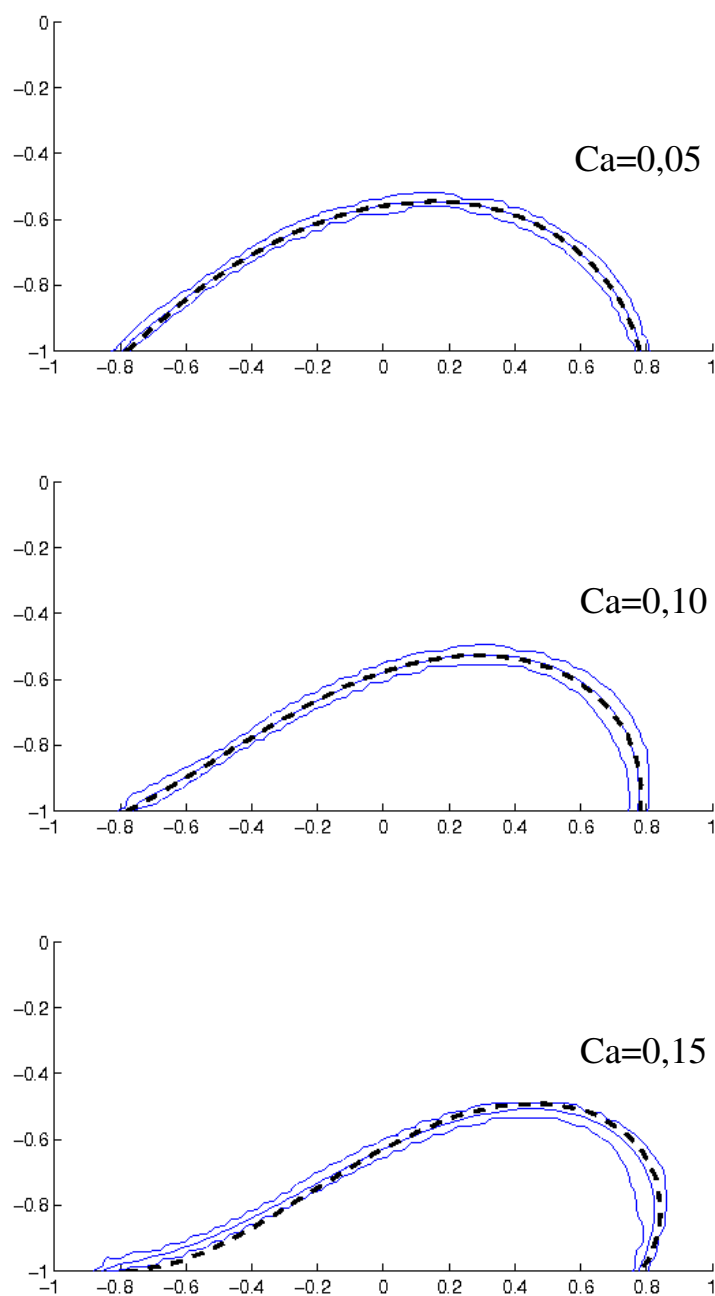


FIG. 3.14 – Comparaison entre les profils de goutte issus de nos simulations (isocontours du taux de présence  $C = 0,05/0,5/0,95$ ) avec les résultats de [Schleizer & Bonnecaze \(1999\)](#) (- -).

Les résultats montrent une très bonne concordance avec la solution de référence. Le maillage tel que  $h = 20\Delta y$  semble suffire pour de telles études. Comme précédemment le cas  $Ca = 0,15$  présente une erreur plus significative mais qui diminue avec le raffinement.

Nota : comme l'illustre la figure 3.14 l'épaisseur numérique de l'interface sur la paroi est d'autant plus grande que l'angle  $\theta$  fait avec la paroi est faible. Nous avons vu au chapitre précédent

que la non reconstruction de l'interface se traduit par une interface dont l'épaisseur  $e$  est de l'ordre de quelques mailles ( $e \sim n\Delta x$  avec  $n$  étant de l'ordre de 3 à 5). Ainsi géométriquement l'interface est étalée sur la paroi sur une longueur  $\sim e/\sin\theta \sim n\Delta x/\sin\theta$ . Par conséquent, le raffinement du maillage se traduit par une réduction de la longueur physique de l'étalement (relativement au rayon de la goutte) mais pas par sa réduction en nombre de mailles qui reste constante.

### 3.3.6 Dynamique du mouillage spontané

L'objectif de cette étude est de valider la modélisation numérique de la dynamique de l'angle de contact. Nos résultats numériques sont comparés à des études expérimentales.

#### Présentation

La dynamique du mouillage peut se présenter sous deux formes distinctes. Il s'agit d'une part du mouillage forcé : la ligne de contact est mise en mouvement sous l'application d'une force extérieure, comme par exemple le fait d'extraire une plaque ou une tige d'un liquide. La dynamique du mouillage a lieu également dans la situation de l'étalement spontané. Dans ce cas, une goutte de liquide est déposée sur une paroi et va s'étaler jusqu'à atteindre sa forme d'équilibre. Ainsi, l'angle de contact va diminuer de  $180^\circ$  au moment de l'impact jusqu'à l'angle statique correspondant à l'équilibre, tandis que la vitesse au point triple va décroître jusqu'à zéro à l'équilibre. Ici, à l'inverse du mouillage forcé, la goutte est hors de l'équilibre à l'instant initial et tend vers l'équilibre.

De nombreuses études expérimentales ont porté sur l'étalement spontané d'une goutte sur une paroi. Cependant, alors que le cas du mouillage total a été très étudié, le mouillage partiel n'a fait l'objet que de peu d'études. Une raison à cela est certainement la grande difficulté de contrôler l'état de surface du matériau utilisé, ce qui rend peu reproductible une expérience. De plus, l'hystérésis de l'angle de contact peut venir perturber l'étalement de la goutte. Quelques expériences existent néanmoins qui consistent, comme dans le cas du mouillage total, à laisser impacter une goutte de taille millimétrique d'un liquide visqueux sur une paroi.

En ce qui concerne le mouillage total, [Marmur \(1983\)](#) proposa une loi de puissance qui recoupe un certain nombre de données expérimentales :

$$A = K t^n \tag{3.23}$$

où  $A$  est la surface mouillée de la paroi, et où  $n$  est compris entre 0,2 et 0,29. Ces résultats expérimentaux confirment les deux approches théoriques qui prédisent une valeur de  $n$  du même ordre ([de Ruijter \*et al.\* \(1999b\)](#)) : le modèle hydrodynamique ([Ngan & Dussan \(1989\)](#)) prédit une relation  $A \sim t^{2/10}$  alors que le modèle de cinétique moléculaire ([Blake & Haynes \(1969\)](#)) prédit  $A \sim t^{2/7}$ .



Les expériences en mouillage partiel ont été entreprises plus tardivement que pour le mouillage total afin d'étudier la généralisation de l'étalement sous forme d'une loi de puissance. Ainsi, Zosel (1993) a étudié le mouillage d'une goutte posée sur une paroi solide en mouillage partiel. Il a utilisé plusieurs fluides de même tension de surface mais de différente viscosité variant sur 4 décades (Polyisobutylène, polydiméthylsiloxane et acide polyacrylique), ainsi que différentes parois. Les résultats montrent qu'adimensionner le temps  $\tau = \sigma t / \mu_L V^{1/3}$  permet de faire coïncider les courbes. Ils montrent également que la dynamique de l'étalement ne dépend que du liquide et non de la propriété de mouillabilité la paroi. Ainsi, une goutte d'un même fluide dans une situation de mouillage partiel ou total va connaître la même évolution initiale. La différence apparaît seulement lorsque la ligne triple est proche de sa position d'équilibre. Le taux d'étalement mesuré dans cette étude donne  $n \simeq 0,28$ .

L'étude expérimentale plus récente de Lavi & Marmur (2004) a proposé la loi suivante :

$$\frac{A}{A_f} = 1 - \exp\left(-\frac{K}{A_f} \tau^n\right) \quad (3.24)$$

où  $A_f$  la surface mouillée de la goutte à l'équilibre et  $K$  est un paramètre d'ajustement. Cette expression a l'avantage de dégénérer en la loi de puissance (3.23) pour le mouillage total ( $A_f \rightarrow \infty$ ). Le taux d'étalement (défini par l'équation (3.23)) mesuré est ici de l'ordre de  $\sim 0,28$ . Les simulations de validation présentées ci-dessous sont faites à partir de données expérimentales de cette étude.

### Paramètres physiques

Une goutte de rayon  $R_0 = (3V/4\pi)^{1/3} = 1\text{mm}$  est posée sur une paroi solide. Elle touche la paroi sur une courte longueur  $r(0) = 0,05\text{mm}$  et forme donc au point triple un angle de contact initial de  $\theta_d(0) = 160^\circ$ . Cela permet d'avoir une interface dont les isovaleurs du taux de présence s'évalent sur un nombre raisonnable de mailles. La goutte est donc à l'instant initial hors de l'équilibre : figure 3.15. Le point triple va se déplacer pour former l'angle statique. Au cours de ce déplacement, l'angle dynamique dépend de la vitesse du point triple et est donné par le modèle hydrodynamique de Dussan 3.2.

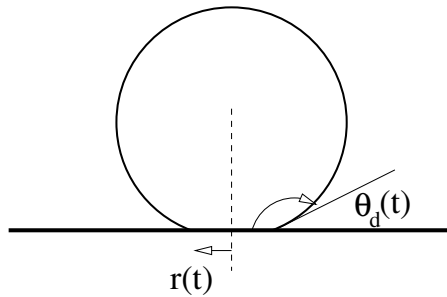


FIG. 3.15 – Goutte posée hors de l'équilibre sur une paroi.

### Paramètres numériques

Le maillage utilisé est bidimensionnel axisymétrique. 50 mailles décrivent le rayon  $R_0$ . Les paramètres physiques dépendent des trois cas étudiés et sont présentés dans le tableau 3.9. Notons que le cas  $LM2$  diffère des deux autres par le nombre de Laplace  $La = \rho_L \sigma R_0 / \mu_L^2$ . Ce nombre est construit en faisant le rapport entre une vitesse visco-capillaire  $\sigma / \mu_L$  et une vitesse capillo-inertielle  $R_0 / T$  où  $T = \sqrt{\rho R_0^3 \sigma}$ . Il permet de faire la distinction entre le régime inertiel et le régime visqueux lors d'un phénomène capillaire. Ainsi, le cas  $LM2$  est un régime inertiel alors que les cas  $LM3$  et  $LM5$  sont dans le régime visqueux.

	$LM2$	$LM3$	$LM5$
$\rho_L$ ( $kg/m^3$ )	773	809	974
$\mu_L$ ( $Pa.s$ )	$3,07.10^{-3}$	$34,0.10^{-3}$	$62,2.10^{-3}$
$\sigma$ ( $N/m$ )	0,027	0,032	0,041
$\theta_s$ ( $^\circ$ )	$35,9^\circ$	$41,5^\circ$	$54,2^\circ$
$La$	2210	20	10

TAB. 3.9 – Paramètres physiques pour les trois cas étudiés issus de [Lavi & Marmur \(2004\)](#).

## Résultats

### Taux d'étalement

Le taux d'étalement  $n$  est donné soit par la loi de puissance (3.23) soit par la relation (3.24) proposée par [Lavi & Marmur \(2004\)](#). Le tableau 3.10 donne les résultats issus des simulations et les compare aux résultats expérimentaux de [Lavi & Marmur \(2004\)](#). La figure 3.16 trace l'aire mouillée adimensionnée  $A^*$  en fonction du temps adimensionné  $\tau$ . L'aire est adimensionnée de manière à la faire varier de 0 à l'instant initial à 1 à l'équilibre :

$$A^* = \frac{A - A_{t=0s}}{A_f - A_{t=0s}} \quad (3.25)$$

où  $A_f$  est défini par la relation :

$$A_f = \pi \sin \theta_s \left( \frac{3}{\pi(1 - \cos \theta_s)^2(2 + \cos \theta_s)} \right)^{2/3} \quad (3.26)$$

Le tableau 3.10 montre un très bon accord entre le taux d'étalement numérique et celui observé dans le cas du régime visqueux ( $LM3$  et  $LM5$ ). La différence est inférieure à 10% ce qui permet de valider l'implémentation numérique du modèle hydrodynamique de Dussan. En revanche, les résultats en régime inertiel ( $LM2$ ) sont différents des expériences. L'étalement est

	<i>LM2</i>	<i>LM3</i>	<i>LM5</i>
relation (3.24) : $n_{exp}/n_{num}$	0,736 / 1,81	0,699 / 0,736	0,775 / 0,720
relation (3.23) : $n_{exp}/n_{num}$	0,24 / 0,42	0,26 / 0,33	0,31 / 0,34

TAB. 3.10 – Taux d'étalement pour 3 cas issus de [Lavi & Marmur \(2004\)](#)

plus lent aux temps courts et plus rapides aux temps longs. De plus, une oscillation autour de  $A_f$  est présente dans la simulation mais n'est pas observée expérimentalement.

Pour comprendre la différence de résultats entre simulation et expérience concernant le régime inertiel (*LM2*), traçons l'évolution temporelle du nombre capillaire et du nombre de Reynolds, tous deux construits à partir de la vitesse du point triple et dont l'échelle de longueur est  $r = 10\mu m$  correspondant à l'échelle de la région intermédiaire. Nous avons vu en effet que le modèle de Dussan suppose que l'écoulement à cette échelle doit correspondre à un écoulement de Stokes et qu'il a été développé pour les faibles  $Ca$ . Il s'agit donc de vérifier que ces conditions sont toujours vérifiées. La figure 3.17 montre pour cela la courbe  $Ca(\tau)$  et  $Re(\tau)$  pour le régime inertiel (*LM2*) et le régime visqueux (*LM3*). On remarque que le nombre capillaire reste toujours faible dans les deux cas, inférieur à 0,1. Par contre, le nombre de Reynolds est inférieur à 0,01 pour le régime visqueux (*LM3*) mais atteint l'unité pour le régime inertiel (*LM2*). Si l'on remplace l'échelle de la région intermédiaire  $r = 10\mu m$  par  $R_0 = 1mm$ , le nombre de Reynolds atteint  $\sim 100$ . Dans tous les cas, il y a deux ordres de grandeur entre *LM3* et *LM2*. Cela confirme que *LM2* est en dehors du domaine de validité du modèle hydrodynamique et que des effets inertiels doivent être pris en compte pour correctement décrire la dynamique du point triple. Ces effets

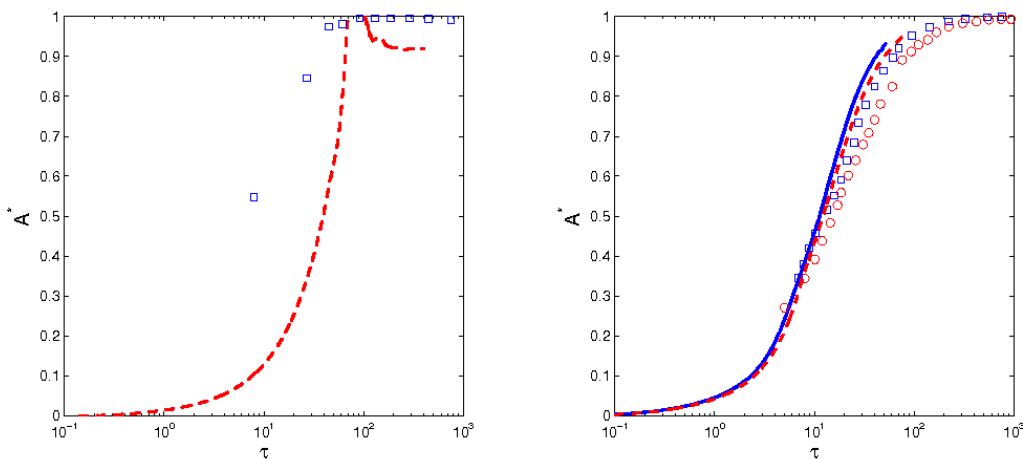


FIG. 3.16 – Evolution de l'aire mouillée adimensionnée  $A^*$  suivant le temps adimensionné  $\tau$ . A gauche : régime inertiel (*LM2*) : (- -) simulations et ( $\square$ ) expériences. A droite : régime visqueux. *LM3* : (- -) simulations et ( $\circ$ ) expériences et *LM5* : (-) simulations et ( $\square$ ) expériences.

ne sont pas pris en compte dans le modèle hydrodynamique implémenté dans JADIM, et c'est pourquoi la simulation en régime inertiel (*LM2*) ne permet pas de retrouver les données expérimentales.

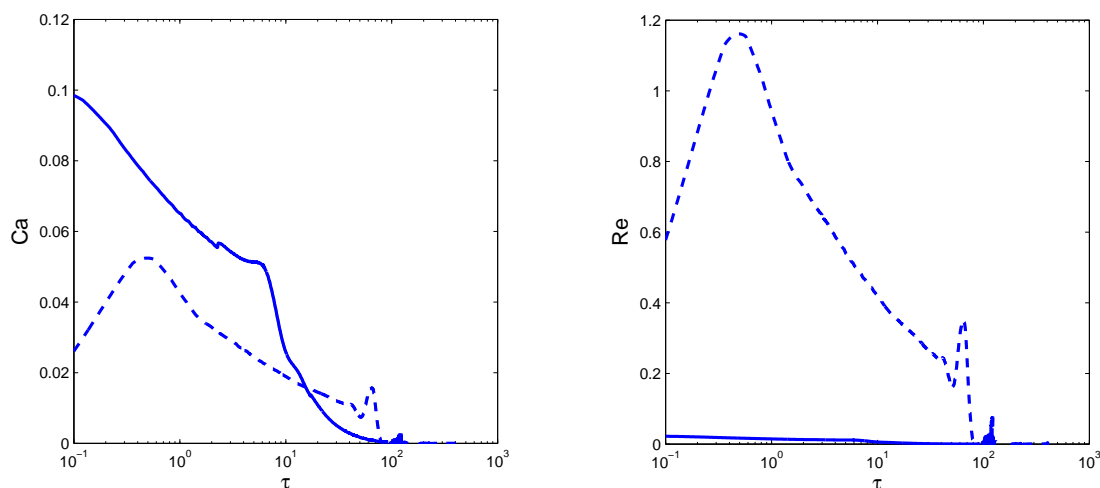


FIG. 3.17 – Nombre capillaire  $Ca$  et nombre de Reynolds  $Re$  en fonction du temps adimensionné  $\tau$  pour le régime inertiel *LM2* (- -) et le régime visqueux *LM3* (-).

### Influence de l'angle dynamique

Nous nous intéressons maintenant au régime visqueux (*LM3*) dans le but de mettre en exergue l'effet du modèle d'angle dynamique. Pour cela, nous comparons la dynamique du mouillage en imposant dans un cas  $\theta = \theta_s$  et dans un autre cas  $\theta = \theta_d$ . Dans certaines conditions, l'étalement d'une goutte en mouillage spontané peut correspondre à un régime quasi-statique où l'interface est à chaque instant sphérique. Il s'agit de l'"approximation d'interface sphérique", étudiée notamment par [Shikhmurzaev \(1997b\)](#) qui montre qu'il est nécessaire que le nombre capillaire  $Ca = \mu_L U_d / \sigma$  et le nombre de Weber  $We = \rho_L U_d^2 R_0 / \sigma$  soient petits devant l'unité.

La figure 3.18 donne l'évolution de l'aire mouillée adimensionnée  $A^*$  en fonction du temps adimensionné  $\tau$  pour ces deux cas, ainsi que l'évolution temporelle du nombre capillaire  $Ca$  et du nombre de Weber  $We$ .

On remarque d'emblée que le mouillage à  $\theta_s$  a lieu à des temps plus courts que pour  $\theta_d$ . La vitesse de mouillage est donc plus importante et induit des effets inertiels pour  $\theta_s$  alors qu'ils sont absents pour  $\theta_d$ . On remarque que pour  $\theta_d$  le nombre capillaire et le nombre de Weber sont toujours petits devant l'unité, les conditions requises par l'"approximation d'interface sphérique" telle que décrite par [Shikhmurzaev \(1997b\)](#) sont vérifiées. Ces conditions ne sont en revanche pas vérifiées pour  $\theta_s$  puisque le nombre de Weber n'est pas petit devant l'unité aux temps courts. Il le devient pour  $\tau > 10$ .

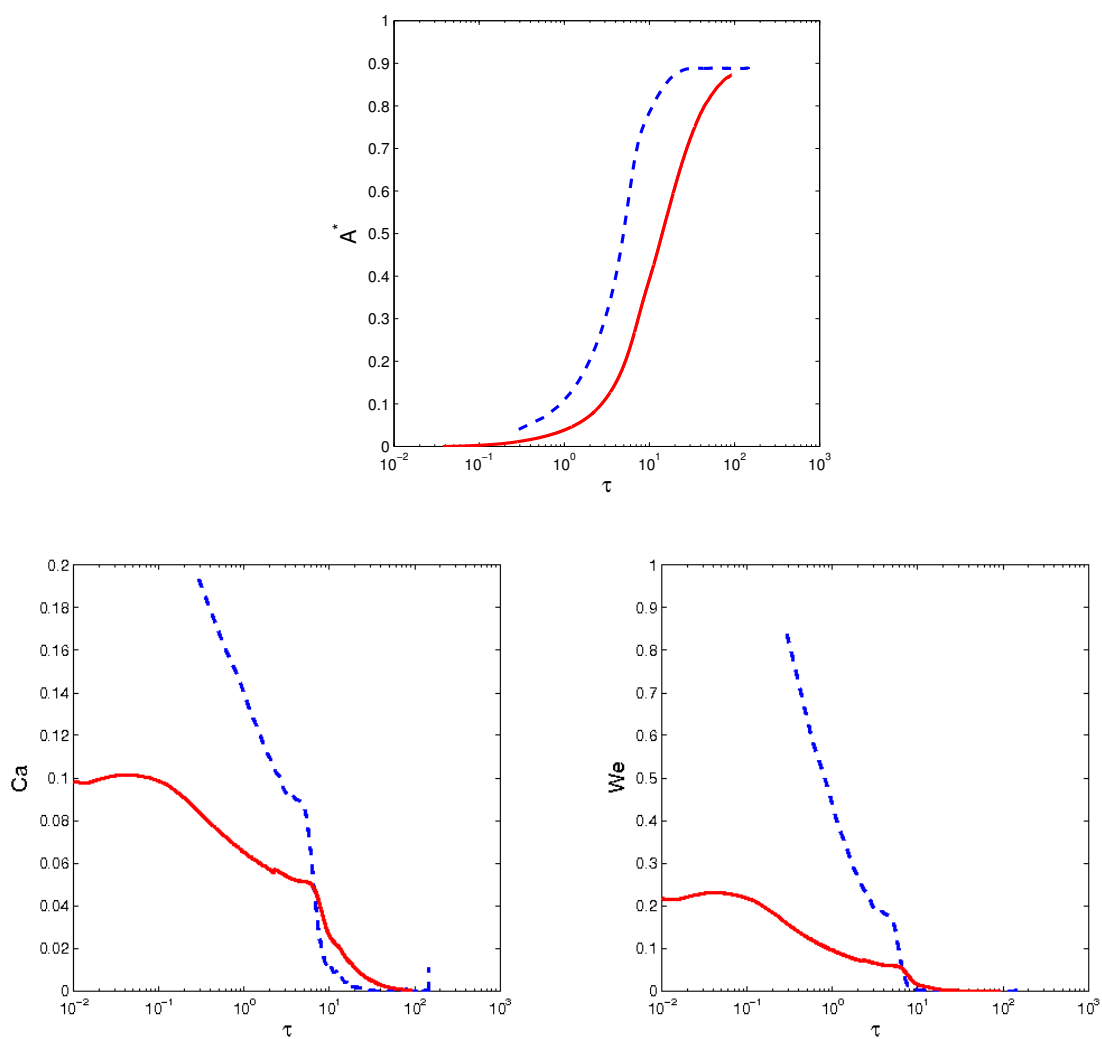


FIG. 3.18 – En haut : Evolution de l'aire mouillée adimensionnée  $A^*$  en fonction du temps adimensionné  $\tau$ . A gauche : Evolution de  $Ca$ . A droite : Evolution de  $We$ . (-)  $\theta = \theta_d$ . (- -) :  $\theta = \theta_s$ .

Cette différence concernant le nombre de Weber entre  $\theta_s$  et  $\theta_d$  est visible si l'on compare l'interface aux mêmes instants : figure 3.19. Dans le cas où  $\theta_d$  est imposé, l'interface est sphérique à chaque instant. Nous sommes bien dans un régime quasi-statique décrit par l'"approximation d'interface sphérique". En revanche, dans le cas  $\theta_s$ , on remarque que le point triple se déplace rapidement et provoque une déformation de l'interface qui n'est plus sphérique. Conformément à l'évolution temporelle de  $We$ , l'interface redevient sphérique pour  $\tau > 10$ .

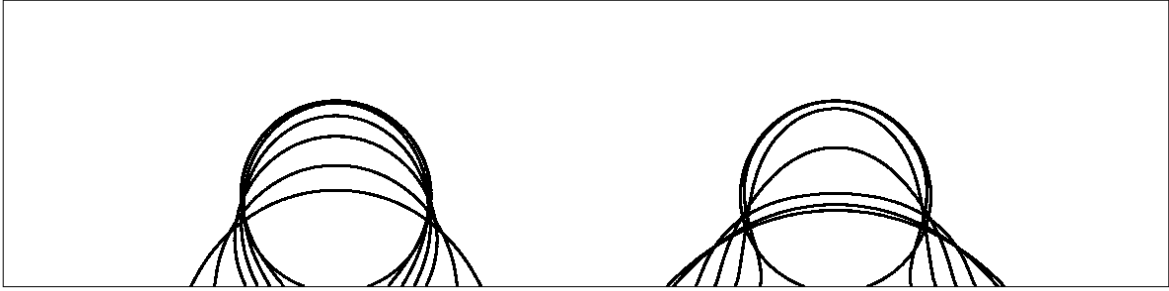


FIG. 3.19 – Evolution temporelle de l'interface pour le cas *LM3* aux instants  $\tau = 1,46, 2,92, 4,38, 5,84, 11,7$  et  $21,9$ . A gauche : avec le modèle d'angle dynamique ( $\theta = \theta_d$ ). A droite : sans le modèle d'angle dynamique ( $\theta = \theta_s$ )

### 3.4 Conclusion

Ce chapitre a présenté le modèle de mouillage implémenté dans le code JADIM. Après une présentation des différents aspects de la physique du mouillage (statique, dynamique et hystérésis), ainsi que des modèles numériques existants, nous avons détaillé l'implémentation du modèle de mouillage retenu dans le code. Un certain nombre de cas-tests ont été étudiés de manière à valider les différents aspects du modèle. Concernant la statique du mouillage, l'étude d'une goutte à l'équilibre sur une paroi hydrophile sans gravité, sur une paroi hydrophobe avec gravité et le cas d'une interface dans un canal à parois de mouillabilité différente ont permis de vérifier que la longueur d'étalement, le saut de pression capillaire étaient correctement simulés. Ensuite, le phénomène d'hystérésis a été étudié dans le cas d'une goutte soumise à un écoulement de Couette. La validation est obtenue par comparaison avec une méthode d'intégrale de frontière (Schleizer & Bonnecaze (1999)) et une méthode de suivi d'interface (Spelt (2005)). Enfin, le modèle d'angle dynamique implémenté dans le code est confronté à des données expérimentales (Lavi & Marmur (2004)) dans le cas du mouillage spontané en mouillage partiel. Ici encore, la comparaison a permis de valider le modèle et d'en confirmer le domaine de validité.



## Chapitre 4

# Mesures expérimentales de l'hystérésis de l'angle de contact

Les minicanaux d'une pile à combustible comportent deux types de matériaux : de l'acier pour les trois faces de la plaque bipolaire et le matériau poreux téflonné de la zone de diffusion gazeuse (GDL). Les dimensions millimétriques rendent les effets de mouillage particulièrement importants. Or, ces matériaux présentent une importante hystérésis de l'angle de contact. Il est donc essentiel de quantifier cette hystérésis pour ces deux matériaux. Nous avons donc effectué une série de mesures d'angle d'équilibre pour évaluer cette hystérésis. L'étude du plexiglas (dont l'appellation technologique est PMMA : polyméthylméthacrylate) sera également faite. Il s'agit du matériau utilisé dans le cadre du contrat IMFT/RENAULT, en remplacement de l'acier afin de réaliser des visualisations expérimentales d'écoulements diphasiques dans les conditions opératoires d'une pile à combustible. Pour effectuer ces mesures d'angle de contact, nous avons bénéficié d'un dispositif expérimental déjà mis en oeuvre au LIPE (Laboratoire d'Ingénierie des Procédés de l'Environnement de Toulouse) à l'INSA de Toulouse avec qui le groupe Interface de l'IMFT collabore étroitement dans le cadre de la plate-forme FERMaT.

### 4.1 L'hystérésis

Lorsqu'une goutte est à l'équilibre sur une paroi horizontale « modèle », l'interface au point triple forme un angle statique unique  $\theta_{eq}$  avec la paroi. Cet angle ne dépend pas de la manière dont la goutte est déposée. Par contre, ce n'est plus le cas dès lors qu'on considère une paroi « réelle ». En effet, si l'on augmente le volume de la goutte à l'aide d'une seringue (figure 4.1), l'angle de contact augmente sans que le point triple ne se déplace. Cette augmentation du volume de la goutte avec un point triple immobile est possible jusqu'à ce que l'angle de contact atteigne une valeur limite  $\theta_A$  dite « angle d'avancée ». Toute augmentation du volume va ensuite entraîner



le déplacement du point triple. Pendant ce déplacement, l'angle sera supérieur à  $\theta_A$  et dépendra de la vitesse du point triple. Il est appelé « angle dynamique » (voir chapitre 3). Si l'on diminue le volume de la goutte, le phénomène est identique. L'angle statique diminue jusqu'à atteindre une valeur  $\theta_R$  dite « angle de recul » et le point triple se met en mouvement avec un angle dynamique inférieur à  $\theta_R$ . La différence entre ces 2 angles  $\Delta\theta = \theta_A - \theta_R$  correspond à l'hystérésis de l'angle de contact.

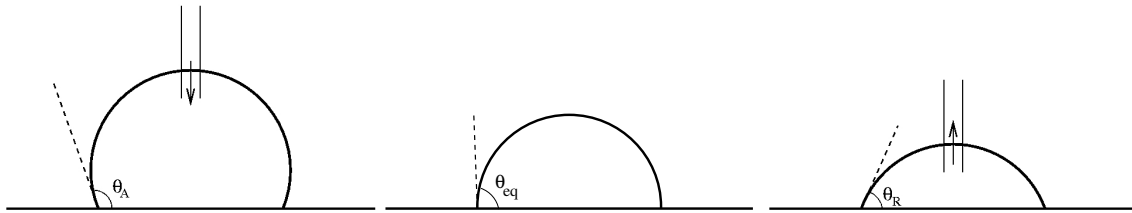


FIG. 4.1 – Mise en évidence de l'hystérésis de l'angle de contact.

Une autre manifestation de l'hystérésis est observée sur un plan incliné. Lorsqu'on incline progressivement la paroi, la goutte ne se met pas immédiatement en mouvement. Sous l'effet de la gravité, l'interface se déforme sans que les points triples ne se déplacent (figure 4.2). L'angle à l'avant augmente progressivement jusqu'à atteindre l'angle d'avancée  $\theta_A$  puis l'interface avance. A l'arrière, l'angle diminue progressivement jusqu'à atteindre l'angle de recul  $\theta_R$  et l'interface commence à reculer. De la même manière, une goutte soumise à un mouvement d'air va dans un premier temps se déformer puis se mettre en mouvement lorsque  $\theta_A$  et  $\theta_R$  seront atteints. Notons que  $\theta_A$  et  $\theta_R$  ne sont pas forcément atteints au même moment.

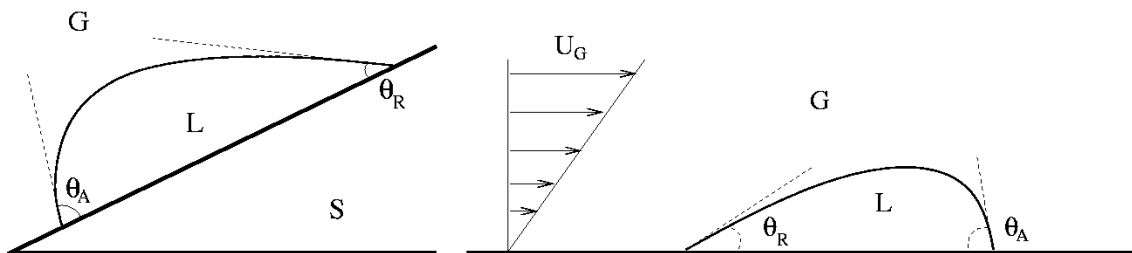


FIG. 4.2 – Goutte à l'équilibre. A gauche : sur un plan incliné. A droite : soumise à un écoulement d'air.

L'hystérésis est une propriété combinée des fluides (liquide/gaz) et de la surface utilisée. Elle est l'expression de la présence d'hétérogénéités physiques (rugosité) ou chimiques (taches). L'existence de l'hystérésis induit une force de rappel qui s'oppose à la mise en mouvement de la goutte. Cette mise en mouvement peut résulter de la force de gravité si la goutte est sur une paroi inclinée voire verticale, et/ou du cisaillement à l'interface dû au débit de gaz. Ces deux situations se retrouvent dans les mini-canaux d'une pile à combustible et sont discutées au chapitre 5.

## 4.2 Dispositif expérimental

Une goutte est formée à l'aide d'une micro-seringue verticale. Le pas de vis de la seringue permet de contrôler le volume de la goutte à  $1\mu l$  près. L'embout hydrophobe de la seringue permet une bonne dépose de la goutte pendante sur le support. La goutte est éclairée d'un côté par une lampe placée derrière une plaque diffusante en PVC semi-opaque et visualisée de l'autre par un appareil photo. Le contour de la goutte est ainsi obtenu par ombroscopie. La figure (4.3) schématise ce dispositif expérimental.

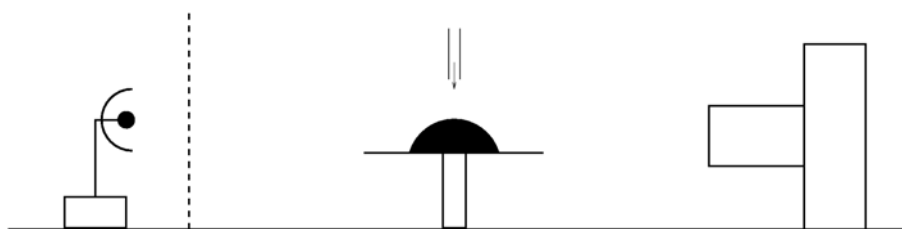


FIG. 4.3 – Schéma du dispositif expérimental. A gauche : la lampe placée derrière une plaque diffusante. Au centre : la goutte sur son support. A droite : l'appareil photo.

De manière à se placer au plus près des conditions de la pile, le liquide utilisé est de l'eau. La température de la goutte au moment de la mesure correspond à la température ambiante de l'ordre de  $20^{\circ}C$ . Pour éviter toute variation de la tension de surface due à la présence de surfactant, nous utilisons de l'eau distillée et les supports sont dégraissés, à l'exception de la GDL pour ne pas risquer d'avoir de micro-gouttes de solvant capturées dans les porosités. Les matériaux étudiés pour ces mesures sont des échantillons des mini-canaux réels d'une pile à combustible développée et fournis par RENAULT.

## 4.3 Méthodes de mesures

Rappelons les échelles de gouttes présentes dans la pile. Dans une section carrée de  $1mm$  de côté d'un mini-canal, le diamètre maximal autorisé d'une goutte est  $D_{max} \approx 1mm$  ce qui donne un volume maximal  $V_{max} \approx 0.5\mu l$ . Le nombre d'Eötvös correspondant est  $Eo = \rho g R^2 / \sigma \approx 0.03$ , ce qui indique que la gravité est totalement dominée par la force capillaire. Dans le cas d'une surface horizontale et en absence de débit de gaz, l'interface présente par conséquent la forme d'une sphère. Dans le cadre de cette étude, le dispositif ne permet pas l'étude de gouttes de si petit volume. Les gouttes étudiées sont de plus gros volume comme nous le décrivons ci-dessous. Trois types de mesures ont été effectuées :

**Série (1) : Mesure de l'angle d'équilibre.** Pour cette étude, nous déposons une goutte de volume fixé à  $10\mu\text{l}$  sur le support horizontal. La goutte posée a un rayon de l'ordre de  $R \approx 1.5\text{mm}$ . Ce volume donne un nombre d'Eötvös  $Eu \approx 0.3$ , ce qui donne une goutte dont la forme reste sphérique : la gravité ne déforme pas sensiblement l'interface. Nous pouvons donc utiliser une méthode géométrique proche de celle utilisée par [LeGrand et al. \(2005\)](#) pour l'étude de la forme de la ligne triple. Un cercle de rayon  $R$  est placé à l'interface et nous mesurons la hauteur maximale  $H$  de l'interface par rapport au support ainsi que la longueur  $L$  entre les points triples (figure 4.4). L'angle statique s'obtient simplement avec la formule  $\theta_{eq} = \text{tg}^{-1}[L/2(R - H)]$ . Pour mettre en évidence la dispersion des mesures avec cette méthode, l'opération est répétée une dizaine de fois.

**Série (2) : Mesure de l'angle d'avancée.** Le mode opératoire dans ce cas revient à augmenter progressivement le volume de la goutte en maintenant l'embout de la seringue dans la goutte. Pour que la perturbation induite par la présence de cet embout ne modifie pas la forme de l'interface dans la région du point triple, il est nécessaire de former de grandes gouttes déformées par la gravité. Ainsi la région du point triple n'est pas perturbée par la déformation induite par l'embout. La forme générale de la goutte est aplatie par la gravité. Ce n'est qu'à proximité du point triple que la tension de surface domine la gravité et impose une forme sphérique à l'interface. On peut donc utiliser une méthode géométrique dans cette région qui consiste à placer un cercle dont l'intersection avec le support correspond au point triple. Enfin, la tangente au cercle en ce point permet de mesurer l'angle statique (figure 4.4). Cet angle est proche de l'angle limite d'avancée  $\theta_A$ .

**Série (3) : Mesure des angles d'avancée et de recul par inclinaison du support.** Nous inclinons maintenant le support de manière à dissymétriser la goutte et à la mettre en mouvement. L'objectif est d'augmenter progressivement l'angle d'inclinaison du support jusqu'à l'angle limite de mise en mouvement de la goutte. Les angles  $\theta_A$  et  $\theta_R$  sont ainsi mis en évidence. Pour des gouttes de petits volumes ( $Eu \lesssim 0,1$ ), un angle d'inclinaison de  $90^\circ$  ne suffit pas toujours à mettre la goutte en mouvement quelle que soit l'inclinaison. Les angles statiques restent donc compris entre  $\theta_A$  et  $\theta_R$  mais sans les atteindre. Nous avons donc utilisé des gouttes de grands volume ( $Eu > 1$ , soit de rayon  $R \gtrsim 0,5\text{mm}$ ) de manière à obtenir un angle limite d'inclinaison du support inférieur à  $90^\circ$ . La méthode géométrique décrite pour la série (2) a été utilisée pour calculer les angles de contact comme l'illustre la figure 4.4.

## 4.4 Résultats

Les mesures de l'hystérésis de l'angle de contact sont présentées dans la figure (4.5) et résumées dans le tableau (4.1). Les trois modes opératoires sont présentés pour chacun des matériaux :

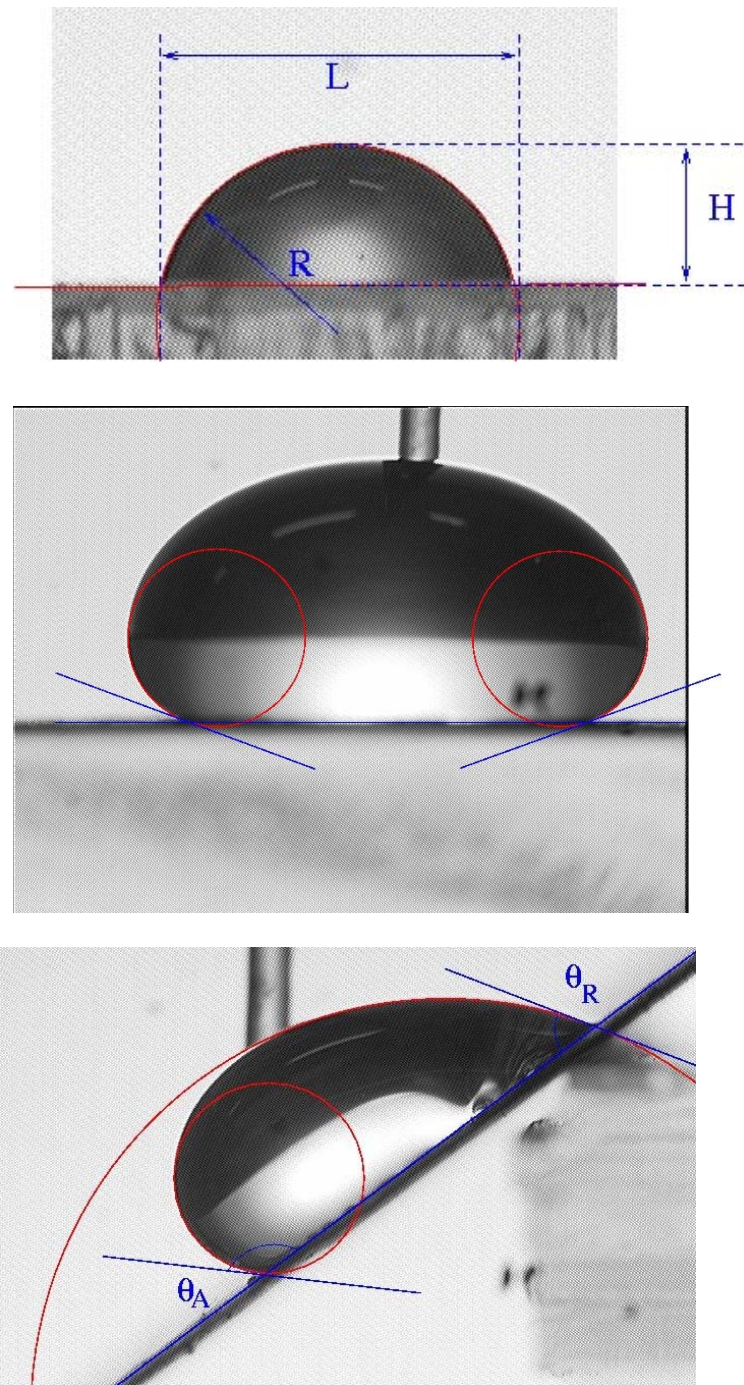


FIG. 4.4 – Illustrations des techniques de mesure. Haut : série 1 ( $Eo \approx 0,3$ ,  $R \approx 1,5mm$ ); Milieu : série 2 ( $Eo \approx 3$ ,  $R \approx 5mm$ ); Bas : série 3 ( $Eo \approx 3$ ,  $R \approx 5mm$ ).

l'angle d'équilibre pour une petite goutte (série 1), l'angle d'avancée pour une augmentation du volume de la goutte (série 2) et les angles de recul et d'avancée pour l'inclinaison du support (série 3).

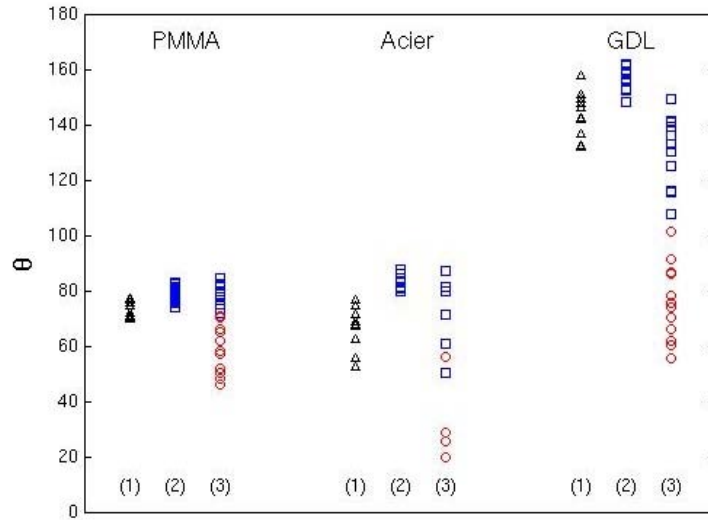


FIG. 4.5 – Angles de contact pour (de gauche à droite) le PMMA, l'acier et la GDL, et pour les trois séries de mesures. Le numéro de la série (1), (2) ou (3) est indiqué entre parenthèses sous les points de mesures.

En ce qui concerne la mesure de l'angle d'équilibre (série 1), on remarque une dispersion significative des mesures pour l'acier et la GDL : l'écart-type de l'angle d'équilibre ( $\sim 8^\circ$ ) est plus important que pour le PMMA ( $\sim 3^\circ$ ). Ce résultat n'est pas surprenant : l'acier est connu pour présenter une forte rugosité et la GDL est un milieu par définition fortement rugueux du fait de sa porosité. Cela confirme bien le fait que la rugosité du matériau est une des causes principales de l'hystérésis de l'angle de contact.

Notons que les séries (2) et (3) ne permettent d'obtenir que des angles légèrement en-deçà des angles d'avancée et de recul. En effet ces angles ne sont atteints que lors de la mise en mouvement de la ligne triple. Pour les 'capturer', il aurait fallu filmer la forme de la goutte à l'instant de la mise en mouvement. L'appareil photo utilisé ne permettait pas cette opération. Par conséquent, les angles mesurés sous-estiment (resp. sur-estiment) l'angle d'avancée (resp. de recul). Pour s'approcher de  $\theta_A$  et  $\theta_R$ , nous prenons en compte le maximum des angles mesurés des séries (2) et (3) pour  $\theta_A$  et le minimum des angles de la série (3) pour  $\theta_R$ .

	PMMA	Acier	GDL
$\theta_A$	$\sim 85^\circ$	$\sim 90^\circ$	$\sim 160^\circ$
$\theta_R$	$\sim 45^\circ$	$\sim 20^\circ$	$\sim 55^\circ$
$\Delta\theta$	$\sim 40^\circ$	$\sim 70^\circ$	$\sim 105^\circ$
$\theta_{eq}$	$73,4^\circ$	$66,3^\circ$	$144,0^\circ$
Ecart-type	$2,8^\circ$	$7,7^\circ$	$8,0^\circ$
$\theta_{eq}^{RENAULT}$	$57,3^\circ$	$55,2^\circ$	$143,6^\circ$
Ecart-type	$1,0^\circ$	$2,6^\circ$	$2,3^\circ$

TAB. 4.1 – Hystérésis de l’angle de contact pour le PMMA, l’Acier et la GDL. Les angles d’équilibre  $\theta_{eq}^{RENAULT}$  mesurés par RENAULT sont également indiqués (Morgante (2006)). Les figures (4.6), (4.7) et (4.8) permettent d’illustrer ces données.

Le tableau (4.1) permet de comparer les propriétés de mouillage des matériaux. Le PMMA utilisé dans le cadre du contrat IMFT/RENAULT est hydrophile  $\theta_{eq} = 73,4^\circ$  et présente une forte hystérésis  $\Delta\theta \approx 40^\circ$ . Les mesures effectuées par RENAULT donnent une valeur de l’angle d’équilibre plus faible  $\theta_{eq} = 57,3^\circ$ . Les figures (4.6) illustrent les valeurs des angles d’avancée, de recul et d’équilibre de ce matériau. Ces valeurs ne sont pas très différentes de celle de l’acier. Cela permet de confirmer la pertinence de l’utilisation du PMMA en remplacement pour les essais du contrat IMFT/RENAULT. L’acier est davantage hydrophile  $\theta_{eq} = 66,3^\circ$  et présente une hystérésis encore plus importante  $\Delta\theta \approx 70^\circ$  (figure 4.7). Cela confirme les observations de Mathieu (2003) qui a mesuré l’hystérésis pour une goutte d’eau sur une plaque d’acier à température ambiante et l’a évalué à  $\Delta\theta \approx 70^\circ$ . Quant à la GDL, les angles mesurés expriment bien le caractère très hydrophobe de ce matériau  $\theta_{eq} = 144,0^\circ$  ainsi que sa structure poreuse qui induit une très importante hystérésis  $\Delta\theta \approx 105^\circ$ . Les figures (4.8) illustrent ces angles.

Concernant l’hystérésis, sa valeur augmente si l’on va du PMMA à la GDL, ce qui n’est pas surprenant si l’on considère toujours la rugosité de la surface. On remarque cependant un changement de comportement entre les deux matériaux hydrophiles (PMMA et Acier) et le matériau hydrophobe (GDL). Pour les deux matériaux hydrophiles considérés, on constate que les angles  $\theta_A$  et  $\theta_R$  sont toujours inférieurs à  $90^\circ$ . Par contre, pour le matériau supposé hydrophobe qu’est la GDL on constate que  $\theta_R$  n’est pas supérieur à  $90^\circ$  comme l’est  $\theta_A$  puisque  $\theta_R \approx 55^\circ$ . Cette propriété donne par conséquent une valeur de l’hystérésis tout à fait importante.

## 4.5 Remarques concernant les mesures

Ce travail expérimental préliminaire nous a amené à quelles réflexions complémentaires.



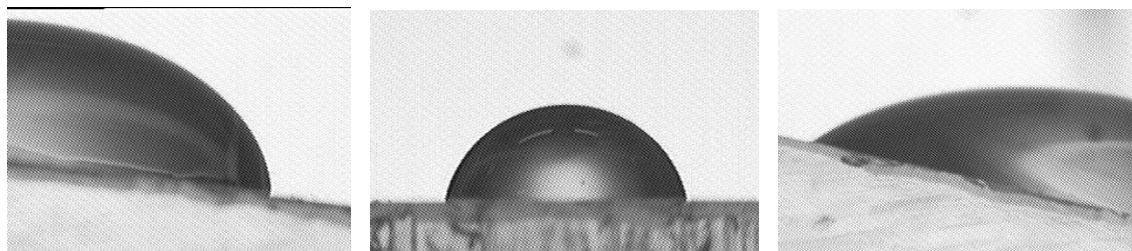


FIG. 4.6 – Exemples d'angles d'avancée  $\theta_A \sim 85^\circ$ , d'équilibre  $\theta_{eq} \sim 73^\circ$  et de recul  $\theta_R \sim 45^\circ$  pour le PMMA.

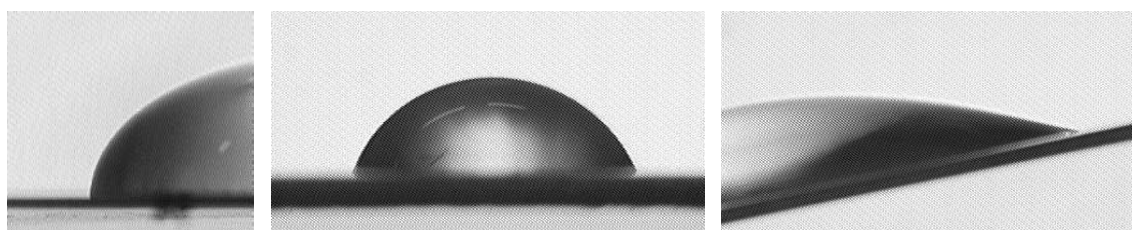


FIG. 4.7 – Exemples d'angles d'avancée  $\theta_A \sim 90^\circ$ , d'équilibre  $\theta_{eq} \sim 66^\circ$  et de recul  $\theta_R \sim 20^\circ$  pour l'acier.

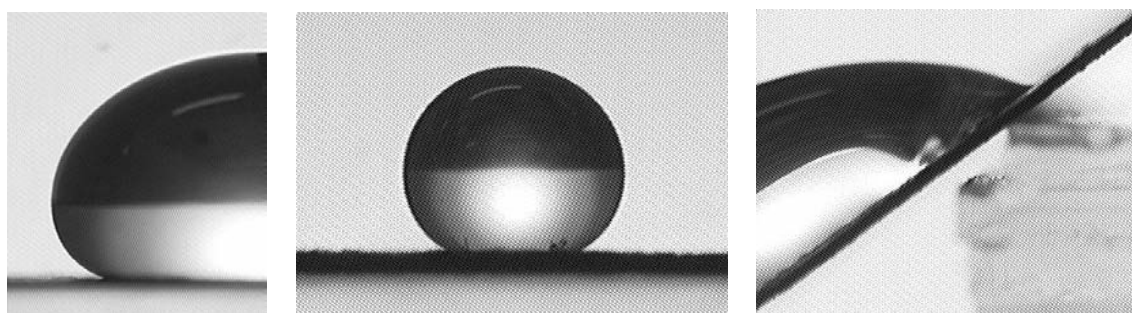


FIG. 4.8 – Exemples d'angles d'avancée  $\theta_A \sim 160^\circ$ , d'équilibre  $\theta_{eq} \sim 144^\circ$  et de recul  $\theta_R \sim 55^\circ$  pour la GDL.

### 4.5.1 Particularités liées à la GDL

Nous pouvons faire remarquer une difficulté liée au dépôt de la goutte dans le cas de la GDL. L'embout de la seringue étant hydrophobe, une goutte qui touche une paroi hydrophile migre immédiatement de l'embout au support. Ce n'est pas le cas lorsque le support est fortement hydrophobe, comme c'est le cas pour la GDL. Il a donc fallu 'violenter' la goutte pour l'obliger à quitter l'embout de la seringue (vibration de la seringue, déplacement du support...). Les gouttes de la série (1) de la GDL ont toutes subi ce traitement.

Lorsque la goutte est posée sur la GDL, nous avons remarqué la présence de perturbations de l'interface dans la région de la ligne triple (figure 4.9) semblable à un film précurseur. Cette situation a lieu essentiellement dans le cas d'une GDL inclinée.

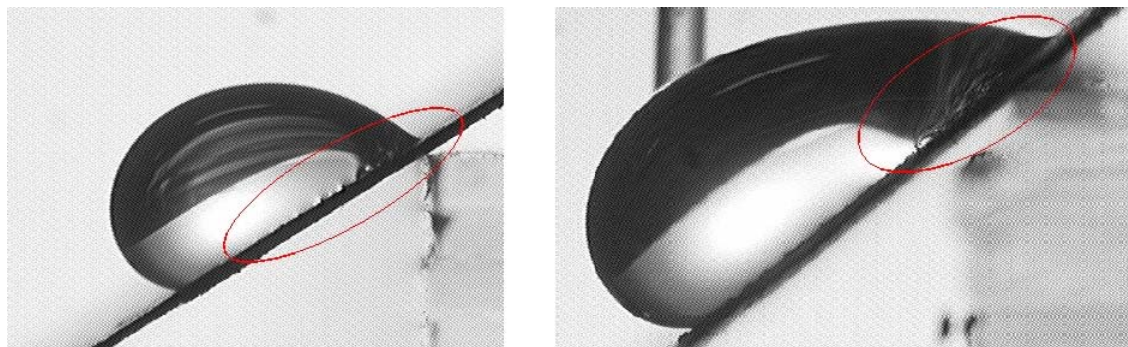


FIG. 4.9 – Perturbations à l'interface le long de la ligne triple.

L'échelle de longueur de ces perturbations semble bien inférieure à la longueur capillaire. On peut supposer que la ligne triple est piégée par des irrégularités locales le long de son contour, du fait de la rugosité de la surface. Nous avons constaté que ces perturbations sont locales et qu'elles ne viennent pas modifier de manière significative la forme globale de la ligne triple et donc la courbure globale de l'interface dans la région du point triple. Nous avons donc pu utiliser la méthode de mesure décrite ci-dessus.

### 4.5.2 Echauffement lié au spot d'éclairage

Comme nous l'avons mentionné plus haut, les gouttes ont été photographiées dès leur dépôt sur la surface d'étude ce qui garantit la mesure à la température ambiante. En laissant la goutte sur le support on observe une lente évaporation de celle-ci conséquence du réchauffement du au spot d'éclairage. Le volume de la goutte diminue alors dans le temps et on observe comme expliqué dans la section 4.1 une variation de l'angle de contact. En effet, sous l'effet de la diminution du volume de la goutte, l'angle de contact prend la valeur de l'angle de recul  $\theta_R$ . Ainsi, ce phénomène d'évaporation a priori perturbateur permet de faire une mesure complémentaire de



l'angle de recul  $\theta_R$ . Rappelons toutefois que la tension de surface diminue avec la température : on s'attend à ce que l'angle mesuré soit plus faible que dans la série de mesures de notre étude.

Pour illustrer ce phénomène d'évaporation, nous considérons ici le cas une goutte posée sur le PMMA.

L'évolution du volume de la goutte adimensionné par le volume initial en fonction du temps est présenté dans la figure (4.10). Les figures (4.11) et (4.12) mettent en évidence le phénomène de recul de la ligne triple : jusqu'à 300s, la ligne triple ne bouge pas tandis que l'angle diminue de  $\sim 70^\circ$  à  $\sim 52^\circ$ . Puis, la ligne triple recule tout en gardant un angle constant  $\sim 45^\circ$ . Cet angle est bien du même ordre de grandeur que l'angle mesuré lors de la série (3) et reporté dans le tableau 4.1 ( $\theta_R \sim 50^\circ$ ). Bien que la température augmente progressivement, l'angle de recul reste ici du même ordre de grandeur que celui obtenu à la température de  $20^\circ C$ . Cette observation permet donc de confirmer les résultats obtenus par la série (3).

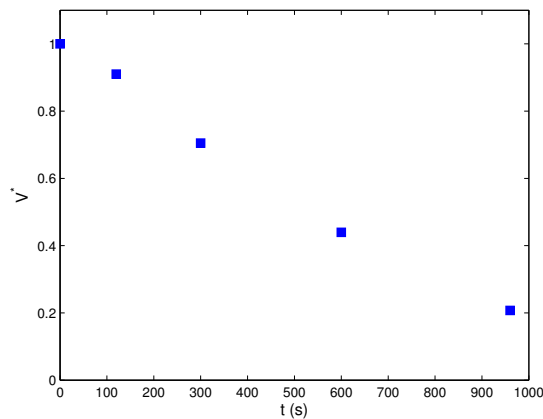


FIG. 4.10 – Evolution temporelle du volume adimensionné d'une goutte posée sur du PMMA s'évaporant sous l'effet de l'éclairage.

## 4.6 Perspectives

A notre connaissance, ce travail a permis de fournir les premières valeurs d'hystérésis de l'angle de contact pour la GDL. Notre objectif en réalisant ces mesures est d'obtenir les données indispensables pour le travail numérique de cette thèse afin de se rapprocher au maximum des conditions opératoires de la pile à combustible. Bien entendu, une mesure in situ étant impossible, nous avons simplifié les conditions de mesure. Nous listons ci-dessous les différents aspects qui nous séparent des conditions réelles d'une pile et qu'il faudrait prendre en considération pour compléter nos mesures.

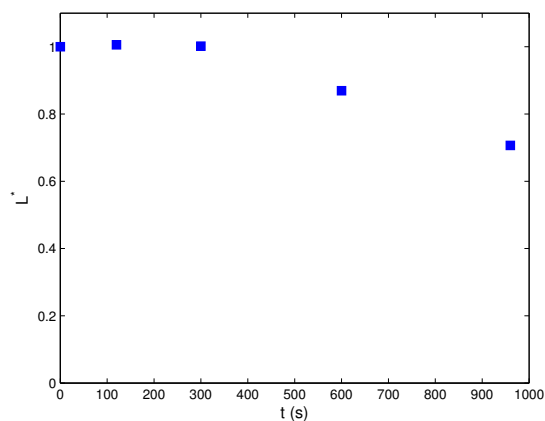


FIG. 4.11 – Evolution temporelle de la longueur adimensionnée de la ligne triple d’une goutte posée sur du PMMA s’évaporant sous l’effet de l’éclairage.

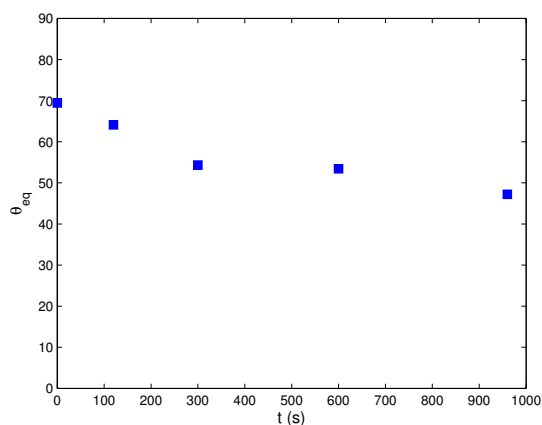


FIG. 4.12 – Evolution temporelle de l’angle de contact d’une goutte posée sur du PMMA s’évaporant sous l’effet de l’éclairage.

#### 4.6.1 Température

La température dans une pile est de l’ordre de 80°C. Or, les mesures présentées ici ont été faites à température ambiante, soit 20°C. On peut donc se demander quelle influence a la température sur les angles d’avancée et de recul? Cependant, nous avons observé l’effet du réchauffement de la goutte sous l’échauffement lié au spot d’éclairage : l’angle de recul reste du même ordre que celui mesuré à 20°C. La température aurait donc une influence faible sur l’hystérésis. Ceci peut s’expliquer par l’existence de ces angles qui est liée essentiellement à des propriétés physiques et chimiques d’hétérogénéité des parois. On peut donc envisager que la température n’a que peu d’influence sur leur valeur. Néanmoins, il serait important de compléter ces observations par des mesures pour une température de l’ordre de 80°C.

### 4.6.2 Nature du gaz

Notre étude a concerné le système paroi/eau/air présent à la cathode de la pile. Il serait intéressant de vérifier que l'utilisation d'air saturé en vapeur d'eau ne change pas sensiblement les résultats, notamment en modifiant l'énergie de surface  $\sigma_{SG}$  entre la paroi et le gaz. Par contre, qu'en est-il pour le système paroi/eau/hydrogène présent à l'anode? Quelles sont les énergies de surface de l'hydrogène avec l'eau et les parois? L'étude de ce système nécessiterait un dispositif expérimental particulier lié à l'utilisation de l'hydrogène. Ici le manque d'information peut s'expliquer par le fait que le problème de l'engorgement des mini-canaux concerne davantage la cathode (alimentée en oxygène) que l'anode (alimentée en hydrogène).

### 4.6.3 Physico-chimie des interfaces

Enfin, il reste un dernier aspect qui nous sépare des conditions réelles d'une pile et qui relève de la physico-chimie : le vieillissement des surfaces. L'angle de contact à l'équilibre  $\theta_{eq}$  résulte de l'équilibre au point triple entre les trois énergies de surface  $\sigma$ ,  $\sigma_{SL}$  et  $\sigma_{SG}$  (figure 4.13).

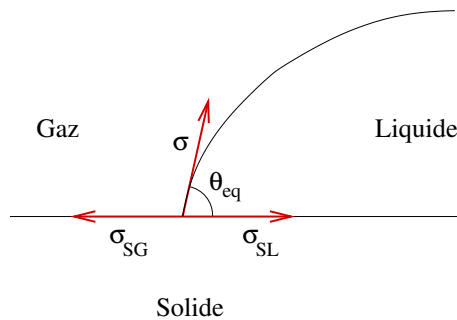


FIG. 4.13 – Définition des trois énergies de surface  $\sigma$ ,  $\sigma_{SL}$  et  $\sigma_{SG}$ , et de l'angle de contact à l'équilibre  $\theta_{eq}$ .

Est-ce que ces deux dernières énergies restent constantes dans le temps en présence d'un débit de gaz? Les échelles de temps de ces variations énergétiques sont à comparer aux différentes échelles de temps de la dynamique des gouttes en mini-canal. Nous avons vu qu'une goutte migre d'une paroi à une autre sur une échelle de l'ordre de la milliseconde. [Yang \*et al.\* \(2004\)](#) ont montré que la dynamique de croissance des gouttes à la GDL peut être de l'ordre de la minute. Quatre décades séparent les échelles de temps de ces deux phénomènes. Est-ce que les énergies de surface sont toujours restées constantes? Pour répondre à cette question, on peut imaginer un dispositif expérimental composé d'un cube de taille centimétrique en plexiglas permettant la visualisation d'une goutte posée sur une paroi (acier ou GDL) horizontale. Dans ce cube peut circuler un débit d'air saturé en vapeur d'eau, voire un débit d'hydrogène. Une caméra numérique à haute définition permet de visualiser le contour de la goutte par ombroscopie. L'intérêt de cette

expérience est d'être faite sur des temps longs, ce qui mettrait ou non en évidence la variation des énergies de surface des phases en présence. Cependant, la question reste ouverte si l'on considère la durée de vie de plusieurs années d'une pile à combustible.

## 4.7 Bilan

Ainsi, nous avons pu mettre en évidence l'hystérésis de l'angle de contact pour trois matériaux : le PMMA, l'acier et la GDL. Nous remarquons que cette hystérésis est particulièrement importante pour les deux matériaux présents dans la pile. Cela va notamment se traduire par l'existence d'une force de rappel qui s'opposera à la gravité et à la force de cisaillement induite par le débit de gaz. Cette force sera d'autant plus importante que la taille des gouttes présentes dans les mini-canaux est bien inférieure à celles étudiées ici.

Ces mesures de l'hystérésis de l'eau sur la GDL sont les premières à notre connaissance. Elles permettent de quantifier un phénomène difficilement accessible et pourtant essentiel dans la physique qui nous occupe. Elles permettent également de fournir des données essentielles qui seront utilement exploitées pour la réalisation de simulations numériques les plus pertinentes possibles.

**Remerciements** Nous remercions vivement Pascal Guiraud, professeur à l'INSA, à la fois pour son aide lors des mesures que pour ses suggestions éclairées. Nous remercions également Dominique Auban, responsable technique du dispositif expérimental que nous avons utilisé au LIPE.



## Chapitre 5

# Migration d'une goutte dans un canal 2D

Dans ce chapitre, nous étudions la déformation et la mise en mouvement d'une goutte dans un canal bidimensionnel. Dans un premier temps, la goutte est placée dans un gaz au repos et le canal, initialement horizontal, est progressivement incliné jusqu'à la verticale. Nous étudions l'influence du nombre d'Eötvös  $Eo = \rho_L g R^2 / \sigma$  ainsi que celle de l'hystérésis de l'angle de contact  $(\theta_R, \theta_A)$  sur la mise en mouvement de la goutte. Dans un second temps, la goutte est soumise à un débit de gaz de type Poiseuille. De manière à étudier l'influence du cisaillement induit sur la goutte ainsi que celle de l'hystérésis, la gravité est négligée. Enfin, nous nous intéressons à l'influence de la gravité puis d'un débit de gaz sur une goutte placée dans un canal de pile à combustible dans les conditions d'utilisation fournies par RENAULT.

### 5.1 Déformation et mise en mouvement sous l'effet de la gravité

L'influence de la gravité sur une goutte posée sur un plan incliné est toujours très étudiée, et profite des avancées récentes dans ce domaine à la fois sur le plan expérimental que numérique. Depuis les études théoriques de Dussan ([Dussan & Chow \(1983\)](#), [Dussan \(1985\)](#)), des études expérimentales récentes se sont concentrées sur l'étude de la forme d'une goutte qui descend une paroi inclinée ([Podgorski \*et al.\* \(2001\)](#), [Snoeijer \*et al.\* \(2005\)](#), [LeGrand \*et al.\* \(2005\)](#)) et notamment sur l'apparition au culot d'une inversion de courbure de l'interface ainsi que la formation de gouttelettes. D'un point de vue numérique, [Dimitrikapoulos & Higdon \(1999\)](#) ont étudié la déformation d'une goutte sur une paroi inclinée avant sa mise en mouvement. L'étude est faite en trois dimensions et utilise une méthode d'intégrale de frontières, ce qui limite ainsi l'étude au régime de Stokes. Ils ne font pas d'hypothèses restrictives sur la forme initiale de la ligne de contact, ni sur la gamme d'hystérésis. Cependant, bien que cette approche permette d'analyser

en détail l'influence de différents paramètres ( $Eo$ , hystérésis, forme initiale de la goutte...), elle ne peut simuler la dynamique de la mise en mouvement de la ligne triple et, ce faisant, de la goutte. Ce chapitre a pour but de reproduire l'ensemble du phénomène, la déformation de la goutte et sa mise en mouvement, ici simulé en deux dimensions.

Pour une goutte 3D sur un plan incliné, l'équilibre des forces de gravité et de capillarité s'écrit (Furmidge (1962) et Dussan & Chow (1983)), où il est supposé que les points triples amont et aval atteignent les angles de recul et d'avancée en même temps :

$$\rho_L V g \sin\alpha_{th} = \sigma l (\cos\theta_R - \cos\theta_A) \quad (5.1)$$

où  $V$  est le volume de la goutte,  $l$  la largeur en contact avec la paroi, et  $\alpha_{th}$  l'angle d'inclinaison de mise en mouvement de la goutte. Pour une goutte en deux dimensions, la relation (5.1) devient :

$$\rho_L A_L g \sin\alpha_{th} = \sigma (\cos\theta_R - \cos\theta_A) \quad (5.2)$$

où  $A_L$  est la surface de la section de la goutte.

Nous cherchons dans un premier temps à reproduire l'angle  $\alpha_{th}$  de mise en mouvement de la goutte prédit par l'équation 5.1. Nous regardons ensuite la mise en mouvement et donc le passage de l'angle de contact statique à l'angle dynamique. L'étude porte ici sur une gamme de nombres d'Eötvös pertinents ( $Eo = \rho_L g R^2 / \sigma = 0.5, 1$  et  $2$ ) et sur une large gamme d'hystérésis d'angle de contact ( $(\theta_R, \theta_A) = (80^\circ, 100^\circ), (60^\circ, 120^\circ)$  et  $(40^\circ, 140^\circ)$ ).

Une goutte est posée sur une paroi horizontale dans un champ de gravité. Progressivement, la paroi est inclinée jusqu'à la verticale et en formant un angle  $\alpha$  avec l'horizontale. Dans un premier temps, la goutte va se déformer tout en restant statique. Eventuellement, à partir d'un angle limite  $\alpha_{th}$ , elle va se mettre en mouvement. Nous cherchons donc à retrouver numériquement ce résultat théorique, en comparant  $\alpha_{num}$  à  $\alpha_{th}$ .

## Paramètres physiques et numériques

Le domaine physique simulé est un canal de dimension  $L * H = 5mm * 1mm$ . Ce domaine est décrit par  $400 * 80$  mailles. La goutte est initialisée sous forme d'un demi-disque de rayon  $R = H/2$  décrit par 40 mailles. Les propriétés physiques des fluides sont  $\rho_L = 1000kg/m^3$  et  $\mu_L = 10^{-2}Pa.s$  pour la goutte et  $\rho_G = 1kg/m^3$  et  $\mu_G = 2.10^{-5}Pa.s$  pour le gaz environnant. Les simulations prennent en compte l'hystérésis de l'angle de contact en imposant deux angles limites  $\theta_R$  et  $\theta_A$ . La tension de surface prend les valeurs  $0,072/2N.m^{-1}$ ,  $0,072N.m^{-1}$  ou  $0,072*2N.m^{-1}$ ,

de manière à faire varier le nombre de Eötvös :  $Eo = \rho_L g R^2 / \sigma = 0.5, 1$  et  $2$ .

La gravité, d'intensité  $g = 9,81 m/s^2$ , varie de manière à ce que la paroi fasse un angle  $\alpha$  avec l'horizontale, cette variation étant linéaire en temps. Il importe de vérifier que la variation d'inclinaison de la paroi reste quasi-statique par rapport à la dynamique du mouillage. Le temps d'établissement des effets capillaires peut être estimé à l'aide du temps caractéristique bâti sur la viscosité  $t_v \sim \mu_L R / \sigma = 0,07 ms$  et/ou sur l'inertie de la goutte  $t_i \sim \sqrt{\rho_L R^3 / \sigma} = 1,6 ms$ . L'inclinaison de la paroi varie de  $\alpha = 0^\circ$  à  $90^\circ$  en  $T = 50 ms$ . Ainsi, nous avons  $T \gg t_i$  et  $T \gg t_v$  c'est à dire que la forme de la goutte s'adapte instantanément à l'inclinaison de la paroi qui peut donc être considérée comme une évolution quasi-statique.

Pour prendre en compte la déformation initiale de l'interface par la gravité, l'inclinaison de la paroi commence lorsque la goutte a convergé vers sa forme d'équilibre. Cette étape est nécessaire pour  $Eo = 2$  et dans une moindre mesure pour  $Eo = 1$ . Pour  $Eo = 0,5$ , la tension de surface domine la gravité et la déformation initiale de l'interface est négligeable. Cependant, cette étape est maintenue dans tous les cas. Ensuite, lors de la mise en mouvement de la goutte, la variation de l'inclinaison de la paroi est maintenue jusqu'à  $\alpha = 90^\circ$  puisque nous avons montré qu'elle peut être considérée comme quasi-statique par rapport à la dynamique de la goutte.

Neuf cas sont étudiés : pour 3 hystérésis de l'angle de contact, nous faisons varier la valeur du nombre de Eötvös. L'évolution de  $\alpha_{th}$  en fonction des angles  $\theta_A$  et  $\theta_R$ , et pour les 3  $Eo$  est donnée par la figure 5.1. On peut remarquer d'emblée la grande influence de ces paramètres sur  $\alpha_{th}$ . Ainsi, pour  $Eo = 2$ , la gravité domine la tension de surface, ce qui implique qu'à partir d'une inclinaison limite, la goutte ne pourra plus rester accrochée à la paroi pour les trois hystérésis. A l'inverse, pour une tension de surface qui domine la gravité ( $Eo = 0,5$ ), la goutte restera accrochée à la paroi, même verticale, pour 2 valeurs d'hystérésis.

## Résultats

Le tableau 5.1 présente les angles d'inclinaison numériques de mise en mouvement  $\alpha_{num}$  en fonction du nombre de Eötvös et de l'hystérésis de l'angle de contact. L'angle théorique  $\alpha_{th}$  issu de l'équation 5.1 est également donné. On remarque dans un premier temps que les angles mesurés coïncident parfaitement avec la théorie. A l'exception du cas correspondant à  $Eo = 1$  et  $\theta_R = 40^\circ$  pour lequel la différence est plus importante, dans tous les autres cas,  $\alpha_{num}$  décrit à 1 ou 2 degrés près l'angle théorique  $\alpha_{th}$  issu du bilan de force de l'équation 5.1.

L'équation d'équilibre de la goutte peut être réécrit de manière à exprimer la variation de l'angle d'inclinaison limite de mise en mouvement  $\alpha_{th}$  en fonction des paramètres physiques de



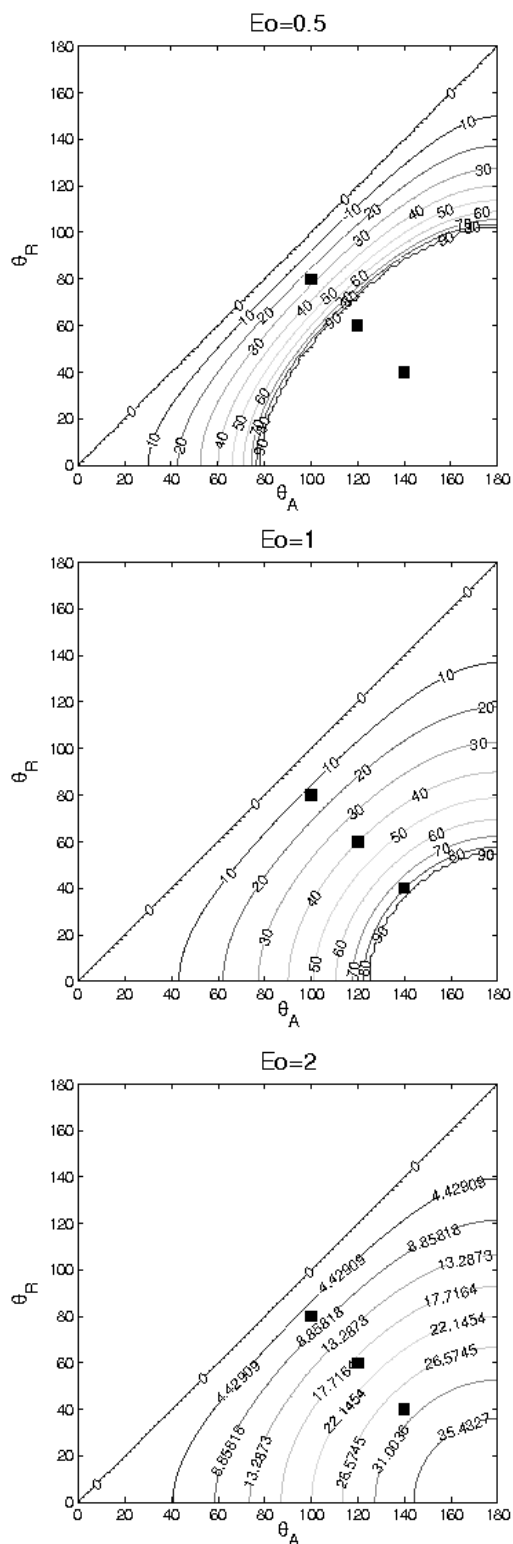


FIG. 5.1 – Isovaleurs de l'angle d'inclinaison  $\sin\alpha_{th}$  de mise en mouvement d'une goutte données par l'équation 5.1 pour  $Eo = 0,5$ ,  $Eo = 1$  et  $Eo = 2$ , en fonction des angles d'avancée  $\theta_A$  et de recul  $\theta_R$ . Les symboles représentent les simulations réalisées.

$\alpha_{th}/\alpha_{num}$	$(\theta_R, \theta_A) = (80^\circ, 100^\circ)$	$(\theta_R, \theta_A) = (60^\circ, 120^\circ)$	$(\theta_R, \theta_A) = (40^\circ, 140^\circ)$
$Eo = 0,5$	$26^\circ/27^\circ$	<i>statique</i>	<i>statique</i>
$Eo = 1$	$13^\circ/14^\circ$	$40^\circ/38^\circ$	$79^\circ/62^\circ$
$Eo = 2$	$6^\circ/10^\circ$	$19^\circ/21^\circ$	$29^\circ/31^\circ$

TAB. 5.1 – Angles de mise en mouvement théorique et numérique pour 3 hystérésis et 3 nombre de Eötvös

la goutte :

$$\sin \alpha_{th} = \frac{2}{\pi Eo} (\cos \theta_R - \cos \theta_A) \quad (5.3)$$

où  $Eo$  est le nombre de Eötvös. Les résultats des simulations numériques sont reportés dans le graphe et comparés à l'expression théorique. On remarque une très bonne correspondance entre la prédiction théorique et les résultats de simulations.

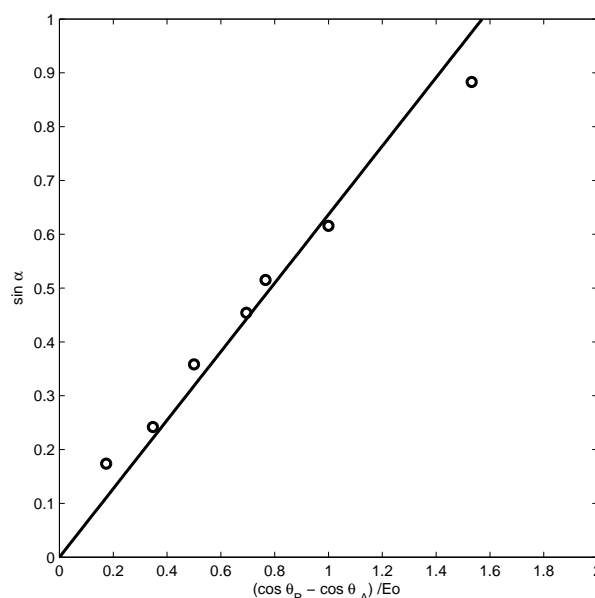


FIG. 5.2 – Variation de l'angle de mise en mouvement  $\alpha_{th}$  en fonction de  $(\cos \theta_R - \cos \theta_A)/Eo$ . – relation (5.3). o simulations.

La figure 5.3 reporte la forme de chaque goutte au moment de leur mise en mouvement c'est à dire pour l'angle reporté dans le tableau 5.1.

### Goutte au repos sur une paroi verticale

Lorsque le nombre d'Eötvös est petit devant 1, et lorsque l'hystérésis de l'angle de contact est suffisamment important, une goutte peut rester immobile sur une paroi verticale. L'expérience quotidienne nous le montre puisque des gouttes de rosée restent "accrochée" à la feuille d'une plante, de même que des gouttes de pluie sur la vitre d'une fenêtre. Les deux conditions pour

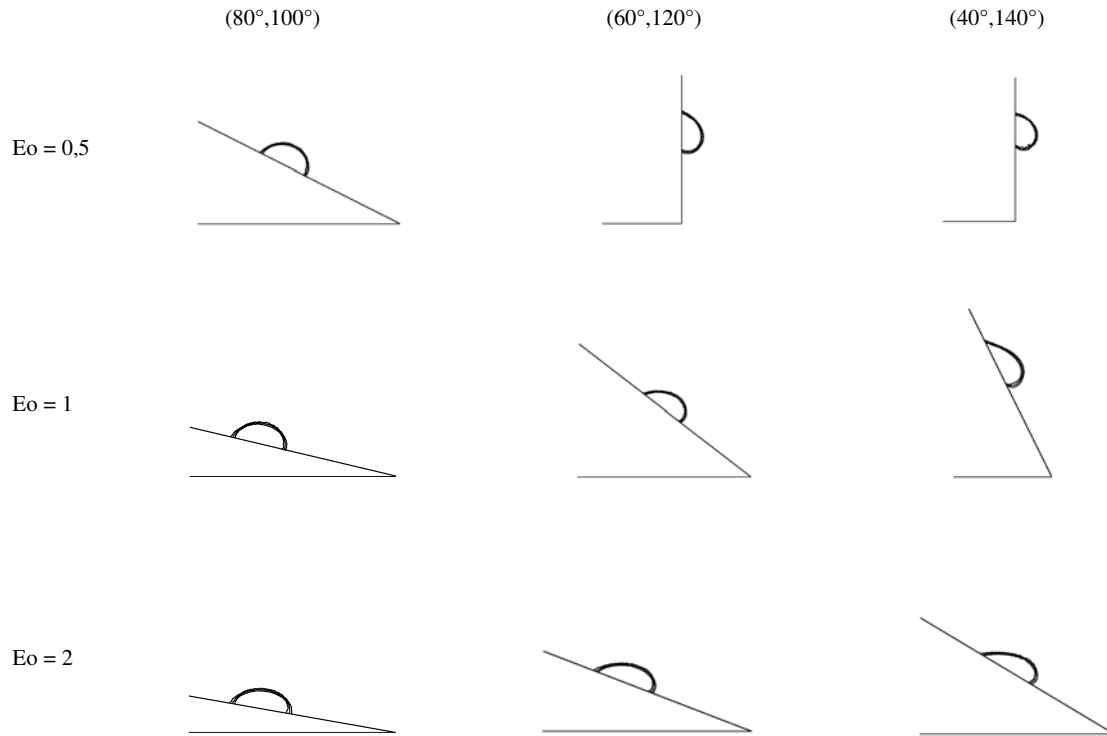


FIG. 5.3 – Gouttes sur une paroi inclinée lors de la mise en mouvement, en fonction du nombre de Eötvös  $Eo$  et de l'hystérésis de l'angle de contact  $(\theta_R, \theta_A)$

que cela se produise sont, comme nous le montre le tableau 5.1, un faible nombre d'Eötvös et une hystérésis importante. Pour illustrer cela, nous pouvons nous intéresser au cas  $Eo = 0,5$  et  $(60^\circ, 120^\circ)$ . La figure 5.4 montre l'évolution de la goutte à différents instants caractéristiques. A  $t_0$ , la goutte est initialisée sur la paroi horizontale sous forme d'un demi-disque. L'angle de contact initial est donc  $90^\circ$ . De  $t_0$  à  $t_1$ , la paroi reste horizontale et l'équilibre entre la gravité et la tension de surface est atteint. Du fait du faible  $Eo$ , l'interface est très faiblement déformée par la gravité. A partir de  $t_1$ , la paroi s'incline progressivement. La goutte se déforme mais ne se met pas en mouvement, même lorsque la paroi devient verticale, à  $t_2$ .

La figure 5.5 représente l'évolution des angles de contact arrière  $\theta_{ar}$  et avant  $\theta_{av}$  en fonction de l'angle  $\alpha$  d'inclinaison. Elle montre que  $\theta_{av}$  a atteint  $\theta_A$  pour  $\alpha = 54^\circ$ , alors que  $\theta_{ar}$  n'a pas atteint  $\theta_R$ . Or, comme le montre la figure 5.4, la goutte ne s'est pas mise en mouvement. Cela illustre le fait que la mise en mouvement a lieu lorsque les deux points triples se mettent en mouvement. L'angle avant  $\theta_{av}$  atteint  $\theta_A$  et se stabilise autour de cette valeur. Il n'augmente pas puisque le point triple arrière  $\theta_{ar}$  reste statique, supérieur à  $\theta_R$ . Ainsi la goutte est maintenue accrochée à la paroi par le point de contact arrière.

La figure 5.6 donne l'évolution des angles de contact  $\theta_{ar}$  et  $\theta_{av}$  en fonction du nombre capillaire

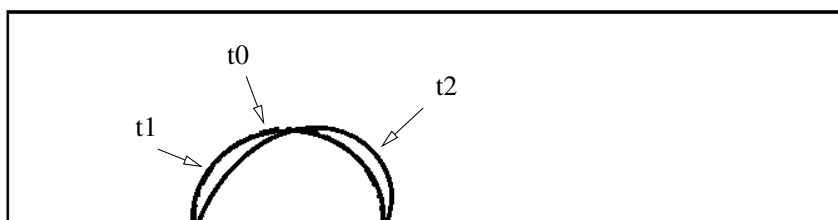


FIG. 5.4 – Déformation et migration d'une goutte sur une paroi inclinée, pour  $Eo = 0,5$  et  $(60^\circ, 120^\circ)$ .  $C = 0,5$  est représenté.  $t_0$  : initialisation avec  $\alpha = 0^\circ$ ,  $t_1$  : début de l'inclinaison avec  $\alpha \geq 0^\circ$ ,  $t_2$  : déformation pour  $\alpha = 90^\circ$ .

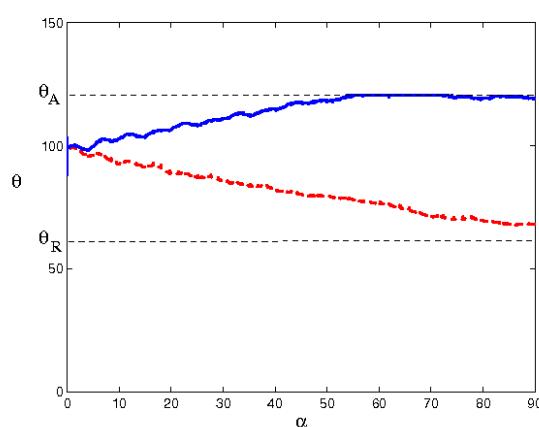


FIG. 5.5 – Angles de contact  $\theta_{ar}$  (- -) et  $\theta_{av}$  (-) en fonction de l'angle  $\alpha$  d'inclinaison.  $Eo = 0,5$ ,  $(\theta_R, \theta_A) = (60^\circ, 120^\circ)$ .

*Ca.* Ce graphe montre en fait que le point triple avant  $\theta_{av}$  est passé du régime statique au régime dynamique. Cependant, sa vitesse de déplacement est très faible, ce qui fait que  $\theta_{av}$  se stabilise autour de  $\theta_A$ . Le point triple arrière  $\theta_{ar}$  reste au-delà de  $\theta_R$ , la vitesse du point triple reste nulle.

### Mise en mouvement de la goutte

Si l'on augmente le nombre de Eötvös, pour une même gamme d'hystérésis, la tension de surface et la mouillabilité ne sont plus suffisantes pour équilibrer la gravité. Au-delà de ce nombre d'Eötvös, il existe un angle  $\alpha_{th}$  pour lequel la goutte se met alors en mouvement. Nous présentons ici le cas pour lequel  $Eo = 1$  et  $(60^\circ, 120^\circ)$ . La figure 5.7 montre 4 instants caractéristiques. A  $t_0$ , la goutte est initialisée sous forme d'un demi-disque et l'angle  $\alpha$  est nul : la paroi est horizontale. De  $t_0$  à  $t_1$ , la paroi reste horizontale et la gravité déforme légèrement l'interface. En effet, pour  $Eo = 1$ , la tension de surface et la gravité sont d'égale intensité : nous ne sommes ni dans le

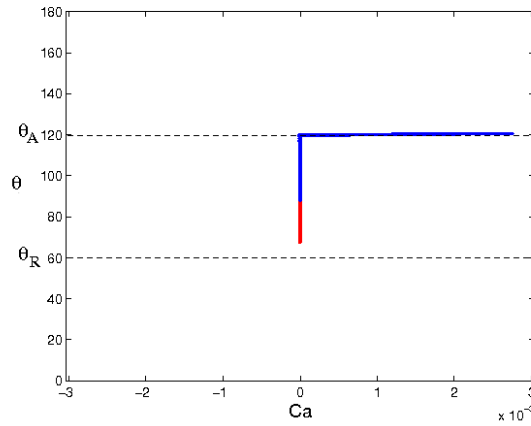


FIG. 5.6 – Angles de contact  $\theta_{ar}$  (- -) et  $\theta_{av}$  (-) en fonction du nombre capillaire  $Ca$ .  $Eo = 0,5$ ,  $(\theta_R, \theta_A) = (60^\circ, 120^\circ)$ .

régime dominé par la tension de surface où la goutte est totalement sphérique, ni dans le régime dominé par la gravité où l'interface est aplatie et la goutte prend la forme d'une "flaque".

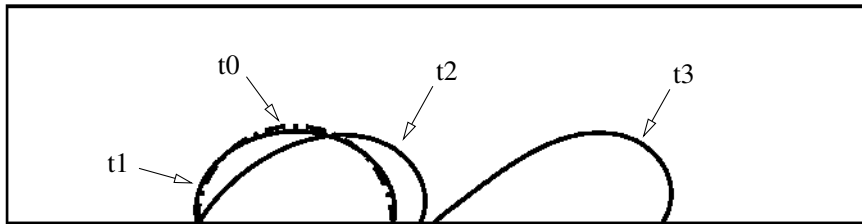


FIG. 5.7 – Déformation et migration d'une goutte sur une paroi inclinée, pour  $Eo = 1$  et  $(60^\circ, 120^\circ)$ .  $C = 0,5$  est représenté.  $t_0$  : initialisation avec  $\alpha = 0^\circ$ ,  $t_1$  : début de l'inclinaison avec  $\alpha \geq 0^\circ$ ,  $t_2$  : mise en mouvement pour  $\alpha_{num} = 38^\circ$ ,  $t_3$  : migration pour  $\alpha \sim 60^\circ$ .

A partir de  $t_1$ , la paroi s'incline progressivement : l'angle  $\alpha$  augmente linéairement. La goutte se déforme tout en restant statique. A  $t_2$ , l'angle d'inclinaison de la paroi est  $38^\circ$  et la goutte se met en mouvement. Cette migration signifie que les points triples ont chacun atteint leur valeur limite  $\theta_R$  ou  $\theta_A$  et qu'il n'est plus possible de compenser le poids de la goutte. Les lignes de contact entrent alors dans le régime dynamique. Leur valeur dépend de la vitesse locale au point triple et sont définis par le modèle de Dussan présenté dans le chapitre 3. L'instant  $t_3$  correspond à la goutte en train de migrer pour une inclinaison de l'ordre de  $60^\circ$ .

La figure 5.8 donne l'évolution des angles de contact  $\theta_{ar}$  et  $\theta_{av}$  en fonction de l'angle  $\alpha$  d'inclinaison de la paroi. On peut noter que l'angle avant  $\theta_{av}$  atteint l'angle d'avancée  $\theta_A$ , pour  $\alpha = 17^\circ$ , bien avant que l'angle arrière  $\theta_{ar}$  atteigne l'angle de recul  $\theta_R$ , pour  $\alpha = 38^\circ$ . Ainsi, le

point triple avant se met en mouvement alors que la goutte reste immobile. En effet, la mise en mouvement de la goutte ne signifie pas que les angles de contact atteignent leur valeur limite au même moment. Le mouillage est bien un phénomène complexe qui mêlent un équilibre local des forces aux points triples ainsi que l'effet global de la tension de surface sur l'ensemble de l'interface.

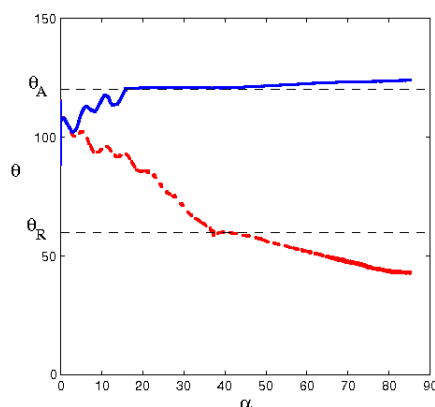


FIG. 5.8 – Angles de contact  $\theta_{ar}$  (- -) et  $\theta_{av}$  (-) en fonction l'angle  $\alpha$  d'inclinaison.  $Eo = 1$ ,  $(\theta_R, \theta_A) = (60^\circ, 120^\circ)$ .

Lorsque  $\theta_{av}$  atteint  $\theta_A$ , le point triple avant se met faiblement en mouvement puisque la goutte reste maintenue par  $\theta_{ar}$ . La figure 5.9 montre en effet que la position du point triple avant évolue peu. Lorsque  $\alpha = 38^\circ$ , le point triple arrière se met en mouvement et la goutte se déplace.

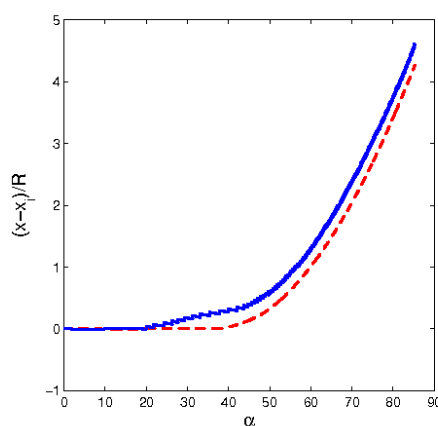


FIG. 5.9 – Positions des points triples  $x_{ar}$  (- -) et  $x_{av}$  (-)  $(x - x_i)/R$  en fonction l'angle  $\alpha$  d'inclinaison.  $Eo = 1$ ,  $(\theta_R, \theta_A) = (60^\circ, 120^\circ)$ .

L'évolution des angles de contact, dans le régime statique puis dans le régime dynamique, peut être mis en évidence par le graphe 5.10, qui donne leur évolution en fonction du nombre capillaire. Le modèle de Dussan y est reproduit : lorsque les angles de contact sont compris dans l'intervalle  $[\theta_R, \theta_A]$ , les points triples restent statiques. En dehors de cet intervalle, les points triples se déplacent. On remarque également que le point triple arrière est beaucoup plus sensible au mouvement que le point triple avant : pour  $Ca = 0,01$ ,  $\theta_{av}$  a augmenté de moins de  $5^\circ$  alors qu'à  $Ca = -0,01$ ,  $\theta_{ar}$  a diminué de près de  $20^\circ$ .

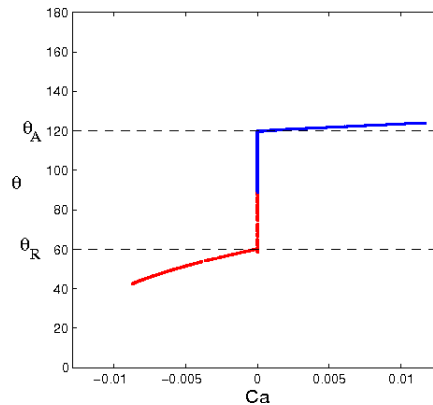


FIG. 5.10 – Angles de contact  $\theta_{ar}$  (- -) et  $\theta_{av}$  (-) en fonction du nombre capillaire  $Ca$ .  $Eo = 1$ ,  $(\theta_R, \theta_A) = (60^\circ, 120^\circ)$ .

## 5.2 Déformation et mise en mouvement sous l'effet du cisaillement

Nous considérons ici une goutte posée sur une paroi horizontale, soumise à un débit de gaz de type Poiseuille. Ce problème est étudié par simulation numérique essentiellement depuis une dizaine d'années. Deux types de méthodes numériques sont utilisées : la méthode d'intégrale de frontières (Li & Pozrikidis (1996), Dimitrikapoulos & Higdon (1997), Dimitrikapoulos & Higdon (1998) et Dimitrikapoulos & Higdon (2001) et Schleizer & Bonnecaze (1999)) et plus récemment une méthode de suivi d'interface : Level-Set pour Spelt (2005) et VoF pour Golpaygan & Ashgriz (2005). Dans le domaine de la méthode d'intégrales de frontière, les auteurs sont limités nécessairement aux petits nombres de Reynolds : l'inertie est négligée. Les études ont porté sur l'influence du fluide environnant, via un nombre capillaire qui compare les effets visqueux induits par le fluide environnant aux effets capillaires, mais aussi sur l'effet de l'hystérésis de l'angle de contact et de la forme de la ligne de contact, dans les cas d'écoulement de Couette ou de Poiseuille. Les méthodes de suivi d'interface ont l'avantage de prendre en compte l'inertie du

gaz mais restent bi-dimensionnelles. Seul Spelt (2005) prend en compte l'hystérésis de l'angle de contact, alors que Golpaygan & Ashgriz (2005) fixent les points triples à la paroi.

Lorsque les effets visqueux sont prépondérants le nombre caractéristique de la déformation et de la migration de la goutte est le nombre capillaire. Selon les auteurs, le nombre capillaire est défini ainsi  $Ca = \mu_G U_h / \sigma$  où  $U_h$  est la vitesse du fluide environnant à la hauteur  $h$  de la goutte. A la différence de la plupart des études précédentes, nous considérons dans cette étude des situations pour lesquelles  $Ca \ll 1$ . Dans cette configuration, Golpaygan & Ashgriz (2005) ont choisi de caractériser le problème à l'aide du nombre de Reynolds  $Re = \rho_G U_h h / \mu_L$ . Dans la suite nous choisissons  $Re_G = \rho_G j_G h / \mu_L$  pour caractériser l'écoulement incident à la goutte où  $j_G$  est la vitesse débitante de gaz dans le canal.

### Paramètres physiques et numériques

Le domaine physique simulé est un canal de dimension  $L * H = 5mm * 1mm$ . Ce domaine est décrit par  $400 * 80$  mailles. La goutte est initialisée sous forme d'un demi-disque de rayon  $h$ . Les propriétés physiques des fluides sont  $\rho_L = 1000kg/m^3$  et  $\mu_L = 10^{-2}Pa.s$  pour la goutte et  $\rho_G = 1kg/m^3$  et  $\mu_G = 2.10^{-5}Pa.s$  pour le gaz environnant. La tension de surface vaut  $\sigma = 0,072N/m$ . La vitesse moyenne débitante  $j_G$  dans un canal de pile s'étend de 0 à 10  $m/s$ . Nous utiliserons cette gamme de débit pour étudier son influence sur la goutte. Dans ces conditions, le nombre capillaire  $Ca \approx \mu_G j_G / \sigma$  maximal est  $\sim 10^{-3}$ . Les effets visqueux induits par le débit du gaz sont bien négligeables devant la tension de surface. Nous pouvons donc écarter le nombre capillaire des nombres pertinents pour caractériser la mise en mouvement de la goutte.

De plus, afin de nous focaliser sur l'effet du cisaillement induit par le gaz, nous considérons que la gravité est négligeable devant la tension de surface  $EO \ll 1$ . Compte tenu des valeurs indiquées ci-dessus, les rapports de viscosité et de densité sont fixés comme précédemment à  $\mu_L / \mu_G = 500$  et  $\rho_L / \rho_G = 1000$ .

Nous étudions comme précédemment 9 cas : 3 tailles de goutte  $h = 0,2mm, 0,5mm$  et  $0,8mm$  et 3 hystérésis  $\Delta\theta = 100^\circ - 80^\circ, \Delta\theta = 120^\circ - 60^\circ$  et  $\Delta\theta = 140^\circ - 40^\circ$ . Pour chaque cas, la goutte est soumise à un débit de gaz croissant. La vitesse moyenne  $j_G$  varie de manière linéaire de 0 à  $10m/s$ , en  $T = 70ms$ . Ce temps de variation de  $j_G$  est supérieur aux temps caractéristique de déformation de la goutte qui sont respectivement de l'ordre de  $t_d \sim \mu_L h / \sigma = 0,07ms$  et  $t_i \sim \sqrt{\rho_L R^3 / \sigma} = 1,6ms$ . Ainsi, de même que pour la variation de l'inclinaison de la paroi dans l'étude précédente, la variation du débit  $j_G$  peut donc être considérée comme étant quasi-statique par la goutte.



## Résultats

Pour chaque cas, nous mesurons la valeur seuil du débit  $j_{G,m}$  telle que la goutte se met en mouvement. Nous calculons ainsi le nombre de Reynolds correspondant  $Re_{G,m} = \rho_G j_{G,m} h / \mu_L$  que nous reportons dans le tableau 5.2 qui indique également pour chaque taille de goutte et chaque hystérésis, la valeur du débit à la mise en mouvement  $j_{G,m}$ .

$j_{G,m}$ $Re_{G,m}$	$(\theta_R, \theta_A) = (80^\circ, 100^\circ)$	$(\theta_R, \theta_A) = (60^\circ, 120^\circ)$	$(\theta_R, \theta_A) = (40^\circ, 140^\circ)$
$\frac{h}{H} = 0,2$	$> 10m/s$ $> 0,2$	$> 10m/s$ $> 0,2$	$> 10m/s$ $> 0,2$
$\frac{h}{H} = 0,5$	$4,4m/s$ $0,22$	$7,3m/s$ $0,36$	$8,5m/s$ $0,42$
$\frac{h}{H} = 0,8$	$1,1m/s$ $0,09$	$1,9m/s$ $0,15$	$2,8m/s$ $0,22$

TAB. 5.2 – Vitesse débitante  $j_{G,m}$ , nombres de Reynolds  $Re_{G,m}$  lors de la mise en mouvement de la goutte, pour 3 hystérésis et 3 rapports de hauteurs.

Nous remarquons tout d'abord que la goutte de taille  $h/H = 0,2$  ne se met pas en mouvement, même pour un débit  $j_G = 10m/s$ , et quelle que soit la valeur de l'hystérésis. Par contre, pour les gouttes de taille  $h/H = 0,5$  et  $h/H = 0,8$ , il y a mise en mouvement en-deça de  $10m/s$  pour toutes les valeurs de l'hystérésis.

La figure 5.11 compare les formes de gouttes pour les 3 tailles et les 3 gammes d'hystérésis. Alors que la goutte de taille  $h/H = 0,2$  ne connaît pas de déformation notable, ni de mise en mouvement (voir tableau 5.2), les gouttes de taille supérieure sont fortement déformées au moment du débit de leur mouvement.



FIG. 5.11 – Comparaison de la déformation des gouttes par cisaillement de gaz, pour les hystérésis  $(80^\circ, 100^\circ)$  (gauche),  $(60^\circ, 120^\circ)$  (milieu) et  $(40^\circ, 140^\circ)$  (droite), pour 3 tailles de goutte  $h/H = 0,2, 0,4$  et  $0,8$ .

La goutte de taille  $h/H = 0,5$  se met en mouvement pour des vitesses importantes (entre  $4,4m/s$  et  $8,5m/s$ ), mais qui correspondent à un nombre de Reynolds  $Re_{G,m}$  qui reste inférieur à 1. Lorsque l'hystérésis augmente de valeur, la mise en mouvement a lieu pour de plus importantes vitesses. Cela montre bien que l'hystérésis est une force de rappel qui s'oppose à la mise en mouvement de la goutte.

En ce qui concerne la goutte de taille  $h/H = 0,8$ , il y a mise en mouvement pour des vitesses

plus faibles que pour la goutte de taille inférieure. Le nombre de Reynolds  $Re_{G,m}$  est donc plus faible que précédemment. On constate ainsi que le nombre de Reynolds de l'écoulement incident basé sur la taille initiale  $h$  de la goutte n'est pas le paramètre pertinent pour caractériser le seuil de mise en mouvement.

De la même manière que dans l'étude sur l'influence de la gravité, Il est possible de caractériser ce seuil en réalisant l'équilibre entre les effets de mise en mouvement et les effets résistants. Ainsi l'équilibre entre les effets inertiels et les effets capillaires peut s'écrire :

$$\rho_G j_G^2 h \propto \sigma (\cos \theta_R - \cos \theta_A) \quad (5.4)$$

où apparaît le nombre de Weber  $We = \rho_G j_G^2 h / \sigma$  basé sur la hauteur initiale de la goutte et la vitesse débitante dans le canal. La comparaison de ce nombre de Weber et de l'hystéresis caractérisé par  $\cos \theta_R - \cos \theta_A$  montre que le seuil de mise en mouvement est bien décrit par la relation précédente pour un rapport  $h/H$  donné. Le critère dépend par conséquent du rapport  $h/H$ . Afin de prendre en compte l'augmentation de l'inertie au passage de la goutte lorsque  $h/H$  augmente nous proposons d'exprimer l'effet d'inertie motrice en fonction de  $j_{G,h}$  la vitesse débitante de gaz au-dessus de la goutte définie par :

$$j_G H = j_{G,h} (H - h)$$

L'équilibre entre les effets d'inertie et capillaire à la mise en mouvement peut être ainsi corrigé et est écrit de manière à conserver le nombre de Weber introduit ci-dessus :

$$\frac{\rho_G j_G^2 h}{\sigma} \propto (\cos \theta_R - \cos \theta_A) \left(1 - \frac{h}{H}\right)^2 \quad (5.5)$$

Les résultats de simulations numériques du tableau 5.2 sont comparés à la relation 5.5 et présentés dans la figure 5.12. L'accord entre la théorie et les simulations est très bon et permet de définir le préfacteur 1,25 dans l'équation 5.5. Ainsi nous proposons pour le seuil de mise en mouvement de la goutte, le nombre de Weber critique :

$$We_c = \frac{5}{4} (\cos \theta_R - \cos \theta_A) \left(1 - \frac{h}{H}\right)^2 \quad (5.6)$$

On vérifie également sur la figure 5.12 que les valeurs du nombre de Weber pour les gouttes de taille  $h/H = 0,2$  sont bien en dessous de la courbe limite pour le débit de gaz maximal considéré ( $j_G = 10m/s$ ). Les valeurs correspondantes du débit de gaz de mise en mouvement déduites de la relation (5.6) sont respectivement  $10m/s$ ,  $17m/s$  et  $21m/s$  pour les hystéresis  $(\theta_R, \theta_A) = (80^\circ, 100^\circ)$ ,  $(60^\circ, 120^\circ)$  et  $(40^\circ, 140^\circ)$ .

## Conclusion

Cette étude a permis de mettre en évidence l'influence du débit de gaz sur une goutte placée

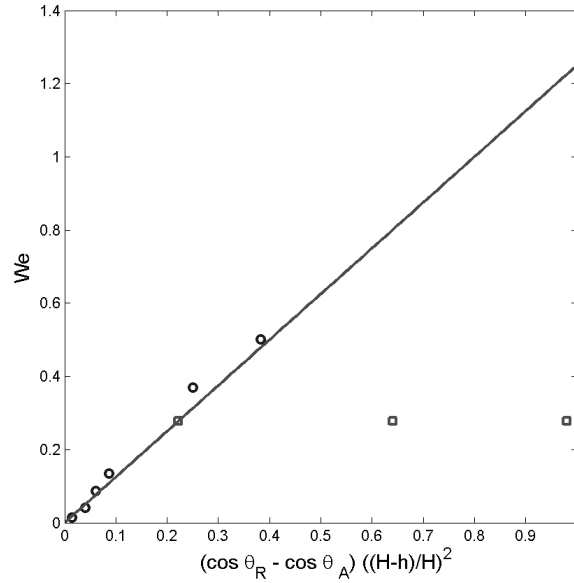


FIG. 5.12 – Variation de  $We = \rho_G j_G^2 H / \sigma$  en fonction de  $(\cos \theta_R - \cos \theta_A) (H-h)^2 / Hh$ . – relation (5.6). Résultats numériques : ○ seuil de mise en mouvement. □ gouttes immobiles pour  $h/H = 0,2$  au débit maximum  $j_G = 10m/s$ .

dans un canal de taille millimétrique et pour des vitesses débitantes allant jusqu'à  $10m/s$ . La mouillabilité de la paroi via le phénomène d'hystérésis a été prise en compte et montre une influence directe sur la valeur de la mise en mouvement de la goutte. Nous voyons dans cette étude que malgré une forte hystérésis, une goutte de taille supérieure à  $h/H = 0,2$  est sensible à la quantité de mouvement induite par le débit de gaz. Après une phase de déformation, elle se met en mouvement pour un débit d'autant faible que sa taille est importante.

Le seuil de mise en mouvement a été caractérisé et nous avons montré que le nombre pertinent pour le décrire est le nombre de Weber basé sur la taille de la goutte et la vitesse débitante de gaz à son sommet.

### 5.3 Gouttes dans un canal de pile

On considère maintenant une goutte avec les propriétés physiques propres à une pile à combustible. Nous étudions l'influence de la gravité et celle d'un débit de gaz sur la déformation et l'éventuelle migration de la goutte. A chaque fois, deux parois sont étudiées, dont les propriétés de mouillabilité différent : une paroi en acier et une GDL. Notons que le rapport de viscosité  $\mu_L/\mu_G$  est maintenant fixé à 50 et non plus à 500 comme précédemment. En réduisant la viscosité de la goutte pour prendre la valeur de celle de l'eau ( $\mu_L = 10^{-3} Pa.s$ ), les effets visqueux, stabilisants, sont plus faibles comparés aux autres forces. D'autres phénomènes apparaissent que nous décrivons dans cette étude.

#### 5.3.1 Influence de la gravité

Nous continuons notre étude en considérant maintenant une goutte de la taille de celles que l'on trouve dans un canal de pile. Deux situations sont considérées qui correspondent chacune aux deux parois présentes dans une pile : l'acier et la GDL. La forme initiale de la goutte est celle d'un calotte sphérique qui vérifie l'angle de contact avec la paroi (figure 5.13). Pour considérer les situations où la gravité à un effet maximal il faut prendre une goutte la plus grande possible c'est à dire pour un sommet proche de la paroi supérieure sans toutefois que la goutte ne mouille la paroi (typiquement  $h = H - \Delta y$ ). Ainsi pour un canal de hauteur  $H = 1mm$ , la goutte initiale a pour rayon de courbure  $R = H/(1 - \cos\theta_{GDL}) = 0,55mm$  sur la paroi de la GDL ( $\theta_{GDL} = 145^\circ$ ) alors qu'il vaut  $R = H/(1 - \cos\theta_{Acier}) = 1,35mm$  sur la paroi en acier ( $\theta_{Acier} = 75^\circ$ ).

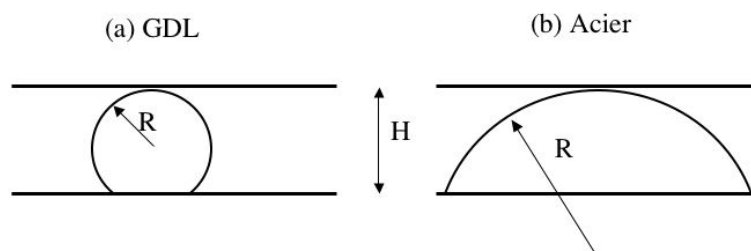


FIG. 5.13 – Forme initiale de la goutte. (a) Posée sur la GDL. (b) Posée sur de l'acier

#### Paramètres physiques et numériques

Le domaine physique simulé est un canal de dimension  $L * H = 5mm * 1mm$ . Ce domaine est décrit par  $400 * 80$  mailles. Les propriétés physiques des fluides sont  $\rho_L = 1000kg/m^3$  et  $\mu_L = 10^{-3} Pa.s$  pour la goutte et  $\rho_G = 1kg/m^3$  et  $\mu_G = 2.10^{-5} Pa.s$  pour le gaz environnant. La

gravité, d'intensité  $g = 9,81m/s^2$  varie linéairement de manière à ce que la paroi fasse un angle  $\alpha$  avec l'horizontale. Les simulations prennent en compte l'hystérésis de l'angle de contact en imposant deux angles limites  $\theta_R$  et  $\theta_A$ . La tension de surface est  $\sigma = 0,072N/m$ . A l'initialisation, la goutte forme un disque de manière à former l'angle  $\theta_{eq}$  à la paroi. Cet angle est donné dans le tableau 5.3 pour les deux parois étudiées.

	Acier	GDL
$\theta_{eq}$	75°	145°
$R$	1,35mm	0,55mm
$\theta_R / \theta_A$	20° / 90°	55° / 160°
$Eo$	0,25	0,04
$\alpha_{th}/\alpha_{num}$	-/-	-/-

TAB. 5.3 – Données d'étude et résultats pour l'influence de la gravité sur une goutte de pile. Le nombre d'Eötvös est calculé à partir du rayon de courbure initial de la goutte  $Eo = \rho_L g R^2 / \sigma$

Le tableau 5.3 donne les caractéristiques de mouillage des 2 parois que nous avons retenu pour cette partie. L'angle  $\theta_{eq}$  correspond à l'angle de mouillage initial. Le nombre d'Eötvös est calculé et montre que dans les 3 cas la tension de surface domine complètement la gravité. Rappelons la relation (5.3) exprimant l'angle d'inclinaison de mise en mouvement de la goutte :

$$\sin \alpha_{th} = \frac{2}{\pi Eo} (\cos \theta_R - \cos \theta_A)$$

Ainsi compte tenu de l'hystérésis très importante, aucune mise en mouvement de la goutte n'est attendue, même pour une paroi verticale. Ainsi, il n'y a pas d'angle théorique de mise en mouvement  $\alpha_{th}$  comme l'indique le tableau 5.3.

### Résultats numériques

Comme attendu, dans les trois cas, la goutte ne se met pas en mouvement lors de l'inclinaison de la paroi. Elle reste immobile jusqu'à l'inclinaison maximale  $\alpha = 90^\circ$ . Ainsi, l'angle numérique de mise en mouvement  $\alpha_{num}$  n'existe pas non plus. Les figures 5.14 et 5.15 montrent les gouttes pour les deux parois, à l'instant initial et à l'instant final. On remarque que l'interface, à l'état final (paroi verticale), est très peu déformée par rapport à l'état initial (paroi horizontale). Ce résultat n'est pas surprenant puisque le nombre de Eötvös est très faible et l'hystérésis de l'angle de contact très importante. La gravité est donc fortement dominée par la tension de surface exercée à l'interface et aux points triples. A l'aide de la relation (5.3) et des valeurs du tableau 5.3, il est possible de déterminer la taille à partir de laquelle une goutte glisse sur une paroi verticale sous l'effet de son poids. Pour la GDL, on trouve  $R \sim 2,7mm$  et pour la paroi en acier  $R \sim 2,1mm$ . Ces valeurs soulignent bien le fait que la gravité ne peut être motrice pour la

migration des gouttes dans un canal de pile à combustible.

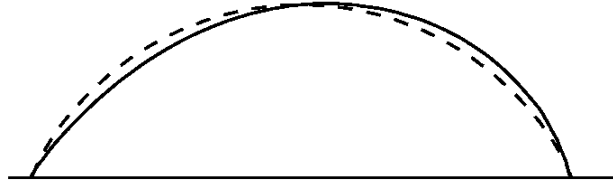


FIG. 5.14 – Goutte telle que  $Eo = 0,41$ , dans un champ de gravité, sur une paroi d'acier horizontale à l'instant initial (- -) et verticale à l'instant final (-). Isocontour  $C = 0,5$ .

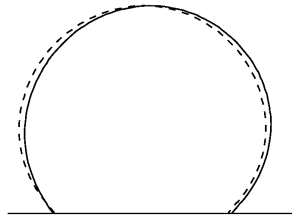


FIG. 5.15 – Goutte telle que  $Eo = 0,04$ , dans un champ de gravité, sur une GDL horizontale à l'instant initial (- -) et verticale à l'instant final (-). Isocontour  $C = 0,5$ .

### Pour une goutte 3D

Nous pouvons évaluer l'influence de la gravité pour le cas réel 3D en appliquant à l'équation 5.1 les valeurs expérimentales du tableau 5.3. L'équation 5.1  $\rho_L V g \sin\alpha_{th} = \sigma l (\cos\theta_R - \cos\theta_A)$  fait intervenir le volume  $V$  et la largeur  $l$  (ici le diamètre) de la ligne de contact. En supposant que la goutte au repos fasse l'angle  $\theta_{eq}$  avec la paroi, le volume  $V$  et la largeur  $l$  s'écrivent :

$$V = \pi h^3 \left( \frac{1}{1 - \cos\theta_{eq}} - \frac{1}{3} \right) \quad l = 2h \frac{\sin\theta_{eq}}{1 - \cos\theta_{eq}} \quad (5.7)$$

La figure 5.16 représente l'évolution de l'angle  $\alpha_{th}$  en fonction de  $\theta_A$  et  $\theta_R$ , et les valeurs expérimentales de ces angles sont indiquées. On remarque que comme pour l'analyse 2D la gravité n'a que très peu d'influence sur la goutte et ne peut la mettre en mouvement que pour une très faible gamme d'hystérésis. Du fait que l'hystérésis dans nos deux cas est très importante, la goutte reste immobile, même sur une paroi verticale. Nous en concluons que dans les minicanaux d'une pile à combustible, pour les gouttes produites sur la paroi de la GDL ou ayant migré sur les parois en acier, la gravité est totalement dominée par la tension de surface et par la mouillabilité.

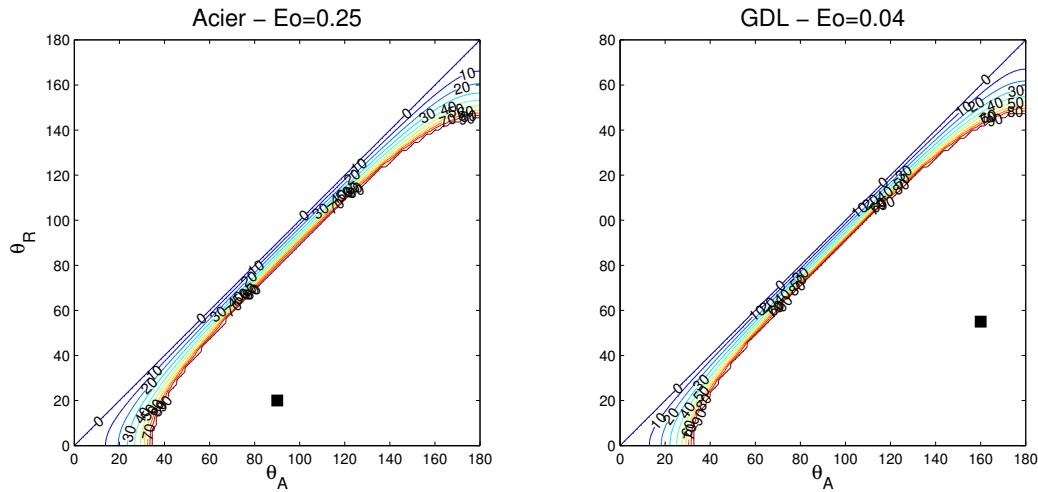


FIG. 5.16 – Angle d’inclinaison  $\alpha_{th}$  de mise en mouvement d’une goutte posée sur une paroi en fonction des angles d’avancée  $\theta_A$  et de recul  $\theta_R$ . Les points représentent les angles  $\theta_R$  et  $\theta_A$  respectifs pour une paroi d’acier (gauche) ou une GDL (droite).

### 5.3.2 Effet du débit de gaz

Nous considérons maintenant une goutte placée dans un canal de pile et soumise à un débit de gaz croissant. De même que dans l’étude précédente, les deux parois, acier et gdl, sont étudiées, ainsi que trois tailles de goutte.

Le débit de gaz  $j_G$  augmente linéairement jusqu’à  $10m/s$ . A la différence de ce qui précède, nous nous concentrons ici sur la taille de goutte  $h/H = 0,5$ , puisque nous avons vu qu’une goutte plus petite est peu sensible au débit et qu’une goutte plus grande y est très sensible. La goutte a une forme initiale imposée par l’angle d’équilibre  $\theta_{eq}$  mesuré expérimentalement. Nous renvoyons le lecteur à la section précédente pour la présentation des caractéristiques physiques et numériques du calcul. Rappelons toutefois que le rapport des viscosités est ici fixé à  $\mu_L/\mu_G = 50$ . Comme nous le verrons dans la suite, le fait que le rapport des viscosités soit plus faible que précédemment rend l’interface davantage sensible aux perturbations physiques et numériques. Pour diminuer l’influence des perturbations numériques, nous utilisons un maillage modifié, raffiné de manière régulière dans la partie inférieure du canal où se trouve la goutte, et moins raffiné suivant une progression arithmétique dans la partie supérieure.

#### Résultats numériques

La figure 5.17 montre, pour cinq débits de gaz  $j_G$ , l’interface de la goutte et les lignes de courant, pour la paroi en acier et pour la GDL. Pour de faibles débits de gaz, les lignes de courant épousent le profil de la goutte. Cependant, pour la goutte posée sur la GDL, un sillage

existe déjà pour un débit de  $j_G = 0,5 m/s$  alors qu'il n'existe pas encore pour la goutte sur acier. Ce comportement surprenant est en fait la conséquence directe de la forme de l'obstacle que voit l'écoulement. En effet sur une paroi hydrophile la goutte présente une forme beaucoup plus aérodynamique que sur une paroi hydrophobe. Puis progressivement, un sillage se développe qui augmente ensuite en longueur ( $j_G = 1$  à  $2 m/s$ ). Enfin, le sillage se déstabilise et devient chaotique.

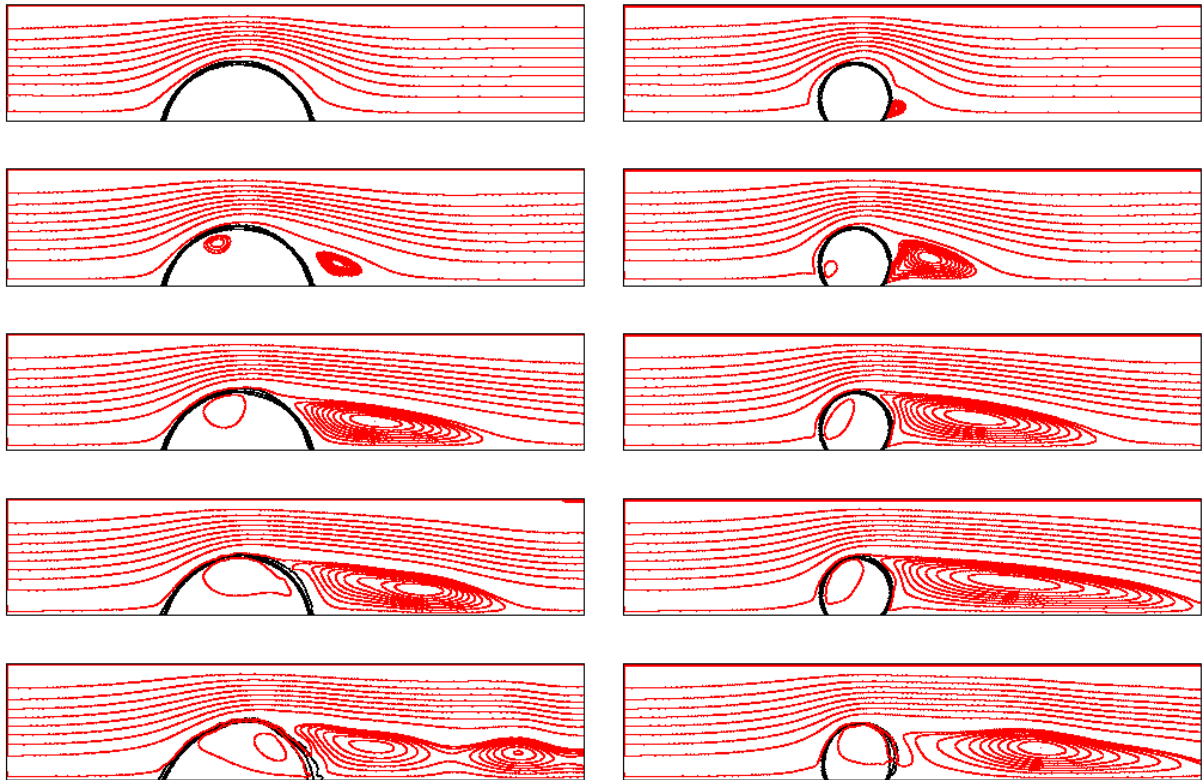


FIG. 5.17 – Goutte en canal soumise un débit de gaz croissant. Sont représentés les lignes de courant et pour l'interface les isocontours  $C = 0,05, 0,5$  et  $0,95$ . A gauche : acier. A droite : GDL. De haut en bas :  $j_G = 0,5 m/s$ ,  $j_G = 1 m/s$ ,  $j_G = 2 m/s$ ,  $j_G = 3 m/s$  et  $j_G = 4 m/s$ .

L'évolution de la goutte est ici tout autre que celle de l'étude précédente : l'interface va se déstabiliser avant que la goutte ne se mette en mouvement. Aussi, alors que dans l'étude précédente, nous donnions la valeur de  $j_G$  correspondant à la mise en mouvement, nous présentons ici la valeur qui mène à la déstabilisation de l'interface de la goutte. Le tableau 5.4 donne le débit de gaz lors de la déstabilisation du sillage, pour les deux gouttes étudiées. Dans les deux cas, il est identique et correspond à un nombre de Reynolds  $Re_G = \rho_G j_G h / \mu_L = 1,7$ . Au-delà de ce débit, l'angle de contact est fortement déstabilisé sous l'effet des fluctuations de vitesse présentes dans la région du point triple.

Parallèlement à l'évolution du sillage, des ondes apparaissent à l'interface de la goutte, créées



	Acier	GDL
$j_G$	$\sim 3,40 \text{ m/s}$	$\sim 3,40 \text{ m/s}$
$Re_G$	$\sim 1,7$	$\sim 1,7$

TAB. 5.4 – Débit  $j_G$  et nombre de Reynolds  $Re_G$  lors de la déstabilisation du sillage.

par le cisaillement du gaz et se déplacent le long de l'interface dans le sens du courant. Nous atteignons ici des limites connues de la méthode numérique "VoF sans reconstruction d'interface" du code JADIM. En effet, [Bonometti \(2006\)](#) a montré que la méthode de suivi d'interface supporte mal la situation d'un déplacement nul ou faible de l'interface avec un fort cisaillement. C'est le cas de la situation présente. Nous observons un épaissement de l'interface dans la zone du décollement du champ de vitesse qui se propage à l'arrière de la goutte et donc dans la région du point triple arrière ce qui provoque une perturbation importante de l'interface. Le résultat est que l'angle de contact n'est plus correctement imposé et l'interface est fortement déstabilisé.

Il faut également souligner que ces simulations ont été réalisées avec une sortie située à cinq diamètres en aval de la goutte ce qui n'est certainement pas suffisant pour s'affranchir de toute perturbation induite par la sortie sur la zone de recirculation.

### Critère de mise en mouvement

Les résultats présentés ci-dessus montrent qu'il est difficile d'atteindre numériquement les débits de gaz permettant la migration de la goutte compte tenu de l'hystérésis important et le fort cisaillement induit sur la goutte. Cependant, d'un point de vue physique, un rapport de viscosité  $\mu_L/\mu_G = 50$  ou  $\mu_L/\mu_G = 500$  ne change pas le comportement du problème considéré. Ainsi il est tout à fait possible d'utiliser le critère obtenu dans la partie précédente pour déterminer le débit de gaz qui va induire la migration d'une goutte dans un canal de pile. Ce critère fait intervenir un nombre de Weber critique :

$$We_c = \frac{5}{4} (\cos \theta_R - \cos \theta_A) \left(1 - \frac{h}{H}\right)^2$$

On rappelle que ce nombre de Weber  $We = \rho_G j_G^2 h / \sigma$  est basé sur la hauteur initiale de la goutte. A l'aide de ce critère il est possible de déterminer sous quelles condition de débit les gouttes vont pouvoir migrer sous l'effet du débit de gaz. Nous reportons dans le tableau 5.5 les débits de gaz de mise en mouvement pour trois tailles de goutte différentes ( $h/H = 0,2$ ,  $h/H = 0,5$  et  $h/H = 0,8$ ) sur une paroi d'acier et une paroi de GDL. On retrouve que le débit de mise en mouvement est d'autant plus élevé que la taille de la goutte est petite. On constate également que les débits sont comparables pour les deux supports malgré que l'un soit hydrophile et l'autre hydrophobe. On observe ici l'effet de l'hystérésis qui contrôle le seuil de mise en mouvement via  $(\cos \theta_R - \cos \theta_A)$  et qui est du même ordre pour les deux matériaux. On constate que les débits sont importants ( $> 1 \text{ m/s}$ ) mais peuvent être observés dans un canal de pile à combustible.

$j_{G,m}$	Acier	GDL
$h/H = 0,2$	$16,5 \text{ m/s}$	$20,9 \text{ m/s}$
$h/H = 0,5$	$6,5 \text{ m/s}$	$8,3 \text{ m/s}$
$h/H = 0,8$	$2,1 \text{ m/s}$	$2,6 \text{ m/s}$

TAB. 5.5 – Vitesse débitante  $j_{G,m}$  lors de la mise en mouvement de la goutte dans un canal de pile de hauteur  $H = 1 \text{ mm}$  pour 3 tailles de goutte.

## 5.4 Conclusion

Ce chapitre a présenté l'étude de la mise en mouvement d'une goutte dans un canal 2D. Nous avons considéré l'effet de la gravité et celui de l'entraînement d'un gaz en régime inertiel. Les résultats numériques obtenus ont permis de mettre en évidence les critères de mise en mouvement associés qui dépendent fortement de l'hystérésis de l'angle de contact. Ainsi une goutte se met en mouvement sous l'effet de la gravité pour un angle d'inclinaison  $\alpha$  vérifiant :

$$\sin \alpha = \frac{2}{\pi Eo} (\cos \theta_R - \cos \theta_A)$$

Elle se met en mouvement sous l'effet de l'écoulement de gaz pour un nombre de Weber  $We = \rho_G j_G^2 h / \sigma$  dont la valeur critique est donnée par

$$We_c = \frac{5}{4} (\cos \theta_R - \cos \theta_A) \left(1 - \frac{h}{H}\right)^2$$

Nous nous sommes ensuite mis dans les conditions de la pile à combustible. Nous avons ainsi constaté qu'une goutte est très difficilement mise en mouvement compte tenu de la forte hystérésis qui est présente à la fois sur la GDL mais aussi les parois bipolaires en acier. Ainsi même pour une inclinaison maximale de  $90^\circ$  une goutte reste attachée à une paroi de GDL ou d'acier. Par ailleurs, elle ne se met en mouvement que pour des débits de gaz largement supérieurs à  $1 \text{ m/s}$ . Ainsi nous allons étudier dans le chapitre suivant la migration d'une goutte sous l'effet de la différence de mouillabilité entre les parois. Cette étude est menée en 3D.



## Chapitre 6

# Migration de gouttes dans un canal 3D de pile

Dans ce chapitre, nous étudions la migration de gouttes dans un canal de pile en trois dimensions. La mouillabilité des parois est prise en compte par l'intermédiaire de leur angle statique,  $\theta_{GDL}$  pour la GDL et  $\theta_w$  pour les trois parois de la plaque bipolaire, l'hystérésis de l'angle de contact n'étant pas pris en compte pour les situations 3D considérées ici. L'objectif principal de ce chapitre est l'étude de la migration d'une goutte formée sur la paroi d'une GDL. On s'intéressera notamment au passage de l'arête formée par deux parois de mouillabilité différente.

La première partie de ce chapitre est un extrait de [Dupont \*et al.\* \(2007\)](#) (référence : Dupont, Legendre & Morgante, 2007, Numerical simulation for two-phase flows in fuel cell mini-channels, J. Fuel Cell Sci. & Tech.), dont la publication est prévue prochainement. Cette publication présente la migration d'une goutte dans un canal millimétrique (partie présentée ici), ainsi que l'instabilité visqueuse en mini-canal qui sera reprise dans le chapitre 8. Nous complétons ici les résultats reportés dans la publication par une discussion sur les conditions de migration.

### 6.1 Migration of liquid droplets inside a mini-channel

In a fuel cell, water is produced by the chemical reaction and appears on the Gas Diffusion Layer (GDL) surface as droplets. The internal wall wettability characteristics are particularly important for the way that the water droplets migrate inside the channel. The main objective for practical applications is to be able to determine the optimal physical properties and operating conditions that optimize the migration of the droplet and their evacuation in the channel. To better understand the phenomena that have a direct influence on the fuel cell performance, numerical simulations can be very useful to analyze the sensibility of the main properties with a perfect control of each parameter.

In this section we consider the migration of water droplets formed on the GDL wall in the channel. The effect of the wettability contrast between the GDL wall and the other walls is the main cause of the droplet migration. The GDL surface is strongly hydrophobic while the three other wall surfaces are hydrophilic. Consequently, after being generated on the GDL wall, the droplet migrates when its surface enters in contact with the adjacent hydrophilic wall. The driven mechanism is the capillary force balance at the contact line whose resulting effect is to generate the motion from the hydrophobic surface to the hydrophilic surface. The droplet stabilizes when all the inertia is dissipated due to the viscosity dissipation and its shape corresponds to the surface of minimum area satisfying the contact angle with the wall(s). This minimum surface area corresponds to liquid trapped by the corner of the channel. We focus on the effects of the injection location, the wettability contrast of the channel walls, the gravity and the coalescence between droplets.

For this purpose we consider a square channel of size  $H = 1mm$ . For all the simulations, the fluid is water, the gravity field is  $g$ , the initial droplet radius is  $R_0 = 0.25mm$  and its shape is a truncated sphere that satisfies the contact angle with the GDL surface which is set fixed at  $\theta_{GDL} = 130^\circ$  (figure 6.1). The initial surface of the GDL wall wet with the liquid is a disc of radius  $R_{GDL} = 0.2125mm$ . The droplet is released at rest and moves under the effect of gravity and/or the effect of capillary. The drop migrates or not depending on the operating conditions. We note  $Z_0$  the initial vertical location of the center of mass of the droplet,  $T$  the temperature,  $\sigma$  the surface tension,  $\rho_L = 1000kg/m^3$  and  $\rho_G = 1kg/m^3$  the density of the liquid and the gas,  $\mu_L$  and  $\mu_G$  their dynamic viscosity and  $\theta_W$  the contact angle of the three other walls of the channel. The reference case corresponds to  $T = 20^\circ C$  ( $\sigma = 0.072N/m$ ,  $\mu_L = 0.001Pa.s$  and  $\mu_G = 0.00002Pa.s$ ),  $\theta_W = 50^\circ$ ,  $g = 9.81m/s^2$  and  $Z_0 = 0.375mm$ . The corresponding Eötvös number is  $EO = (\rho_L - \rho_G)gH^2/\sigma = 0.14$  suggesting a dynamics mainly controlled by surface tension. For all the simulations, the numerical domain is a square box described by 40 cells in all directions.

### 6.1.1 Effect of the initial position

We first consider the effect of the initial position on the droplet migration. Two positions are compared  $Z_0 = 0.375mm$  and  $Z_0 = 0.625mm$ . Note that for such an initial condition (the droplets being only in contact with the GDL wall), the droplet stays at rest under zero gravity condition. Figure 6.2 presents the two droplets at different instants. In this two cases, the droplet start to fall under the gravity. The droplet impacts the horizontal wall with different inertia due to the difference of the distance of fall along the GDL wall. After their impact, the droplets migrate due to the wettability contrast which induces the total migration corresponding to the most efficient scenario for the fuel cell performance. The surface tension effect is then dominant and the same dynamics is observed for the two droplets. A detailed analyze of the time evolution

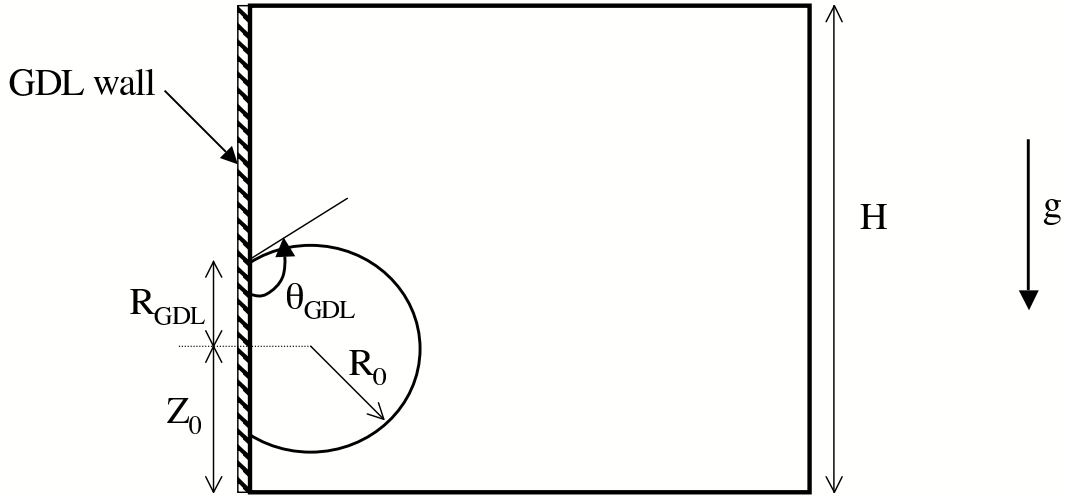


FIG. 6.1 – Initial shape and position of the droplet on the GDL in the square section of the channel containing the drop center.

of the two droplets after their impact show that the dynamic is very similar for the shape as well as for the migration velocity. This can be observed on figure 6.2 where the comparison of the time between two identical events in the same for both condition.

### 6.1.2 Effect of gravity

According to the small value of the Eotvos number ( $EO = 0.14$ ), the effect of gravity is observed in the previous section to be negligible during the dynamical phase controlled by the surface tension. But it can be also observed that gravity induces a vertical stratification of the liquid corresponding in the previous section of the fall of the droplet along the GDL wall. In order to compare directly the gravity effect with the effect of the surface tension, we consider two situations, one under normal gravity condition and the second under zero gravity condition. A droplet is initially at rest on the GDL wall at the vertical location  $Z_0 = 0.775mm$  so that its interface is in contact with the upper wall. The combination of the surface that do not minimize its energy and the wettability difference between the two walls tends to generate the droplet migration on the upper wall while gravity tends to provoke the droplet motion towards the lower wall as observed previously in figure 6.2. Figure 6.3 presents the comparison between the two gravity conditions and no noticeable difference is observed. The plot of the time position of the center of the droplet (not reported here) confirms few difference between the two droplets motion as suggested by figure 6.3. This result stresses that the capillary mechanism is dominant for such a system when the capillary is the driven mechanism.

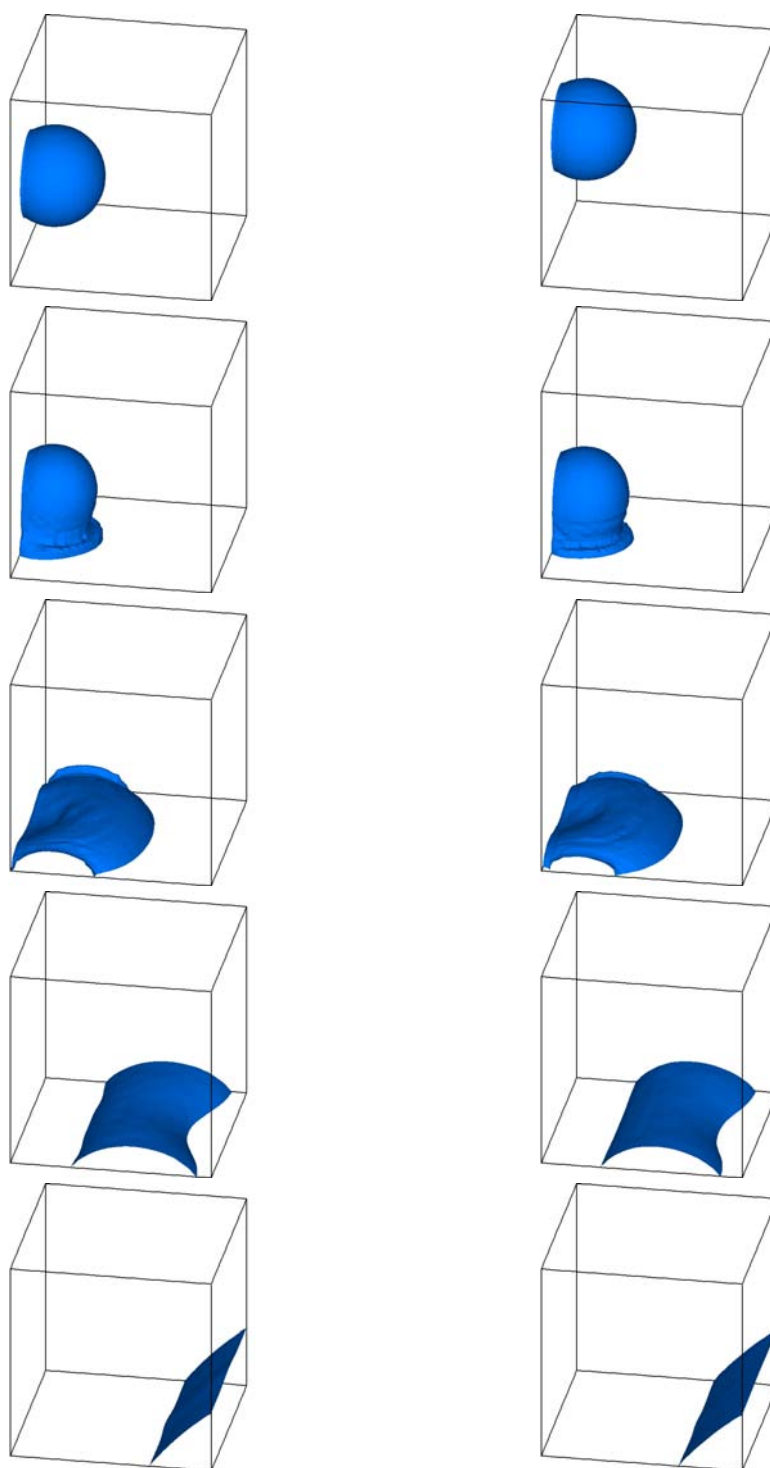


FIG. 6.2 – Effect of the initial position  $Z_0$  of a droplet on its migration. Left :  $Z_0 = 0.375mm$  (from top to bottom,  $t = 0s$ ,  $t = 5.1ms$ ,  $t = 5.9ms$ ,  $t = 7.6ms$  and  $t = 14.1ms$ ). Right :  $Z_0 = 0.625mm$  (from top to bottom,  $t = 0s$ ,  $t = 10.4ms$ ,  $t = 11.2ms$ ,  $t = 13.1ms$  and  $t = 19.6ms$ ).

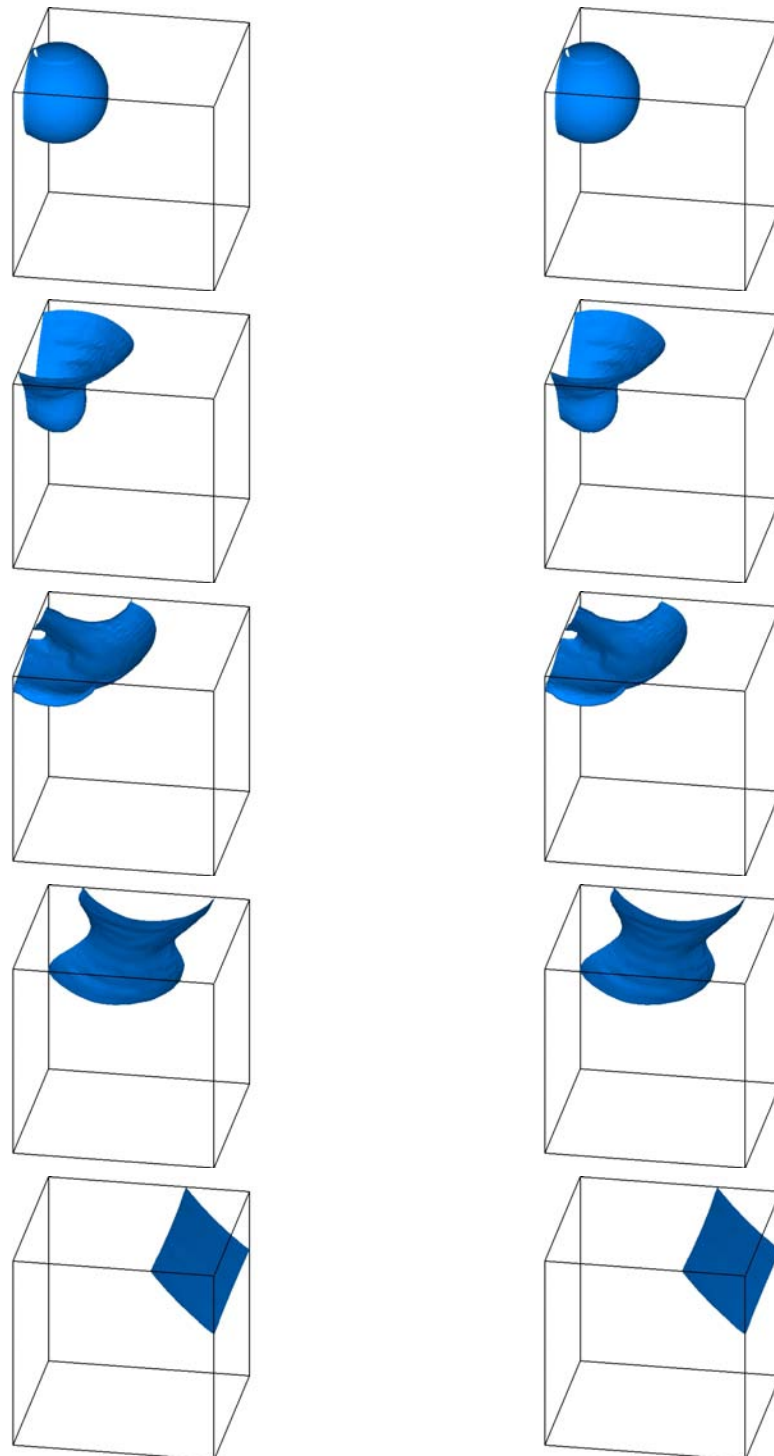


FIG. 6.3 – Effect of the gravity on the migration of a droplet in contact with the upper walls. (left)  $g = 0 \text{ m/s}^2$ , (right)  $g = 9.81 \text{ m/s}^2$ . From top to bottom,  $t = 0 \text{ s}$ ,  $t = 0.49 \text{ ms}$ ,  $t = 0.98 \text{ ms}$ ,  $t = 1.96 \text{ ms}$  and  $t = 19.6 \text{ ms}$ .



### 6.1.3 Effect of the wettability contrast

We now consider the effect of the wettability contrast between the GDL wall and the other walls of the channel. This difference of contact angle between the walls constituting the channel is the main cause of the droplet migration. The GDL surface is strongly hydrophobic while the three other surfaces are hydrophilic. In this section we want to study the effect of the wettability contrast on the efficiency of the migration. For this purpose the wettability of the GDL wall is set fixed at  $\theta_{GDL} = 130^\circ$ , while the wettability of the three other walls are changed. The wettability contrast is analyzed for  $\theta_W = 50^\circ$  (reference case),  $\theta_W = 60^\circ$ ,  $\theta_W = 70^\circ$ ,  $\theta_W = 90^\circ$ ,  $\theta_W = 110^\circ$  and  $\theta_W = \theta_{GDL} = 130^\circ$ . As expected the contrast of wettability in the channel is found to have a significant effect as shown by figure 6.4. Depending on the wall contact angle the migration can be perfect and the droplet is stabilized on the wall facing the GDL as observed for  $\theta_W = 50^\circ$ . When the wettability difference is reduced by increasing the contact angle of the channel walls, the migration can be stopped and the drop is then stabilized in contact with the GDL wall as observed for  $\theta_W = 70^\circ$  in figure 6.4. These results suggest a threshold value for the contrast of wettability for the migration.

In order to quantify the efficiency of the migration, we measure in the simulation the normalized surface  $S^*$  defined as the ration of the final GDL surface  $S_f$  wet with liquid to the initial surface  $S_0$  wet :

$$S^* = \frac{S_f}{S_0}$$

When  $S^*$  decreases the efficiency for the gas exchange with the GDL is increased and the value  $S^* = 0$  corresponds to the maximum efficiency. Figure 6.5 reports the evolution of  $S^*$  versus the difference of wettability  $\Delta\theta = \theta_{GDL} - \theta_W$ . We observe that  $S^*$  decreases when the difference of wettability increases. As suggested by the figure 6.4 a threshold value is observed for a difference of contact angle ranging between  $\Delta\theta_W = 60^\circ$  and  $\theta_W = 70^\circ$ .

### 6.1.4 Effect of the temperature

The effect of the temperature is now considered. Depending on the condition of working, the temperature of a fuel cell can vary. We select here three cases in order to study significant contrasts of temperature :  $T = 0^\circ C$ ,  $T = 20^\circ C$  and  $T = 80^\circ C$ . The latter temperature is the temperature in normal operating conditions while the two first temperatures could be the temperature of the initial condition imposed by the ambient medium. The temperature has a direct influence on the values of the viscosity of the fluids and also on the value of the surface tension. At  $T = 0^\circ C$ ,  $\sigma = 0.076 N/m$ ,  $\mu_L = 0.0018 Pa.s$  and  $\mu_G = 0.000019 Pa.s$ , at  $T = 20^\circ C$   $\sigma = 0.072 N/m$ ,  $\mu_L = 0.001 Pa.s$  and  $\mu_G = 0.00002 Pa.s$  and at  $T = 80^\circ C$   $\sigma = 0.063 N/m$ ,  $\mu_L = 0.00035 Pa.s$  and  $\mu_G = 0.000023 Pa.s$ . Note that when the temperature increases, the viscosity decreases which facilitate the liquid motion while the surface tension decreases which

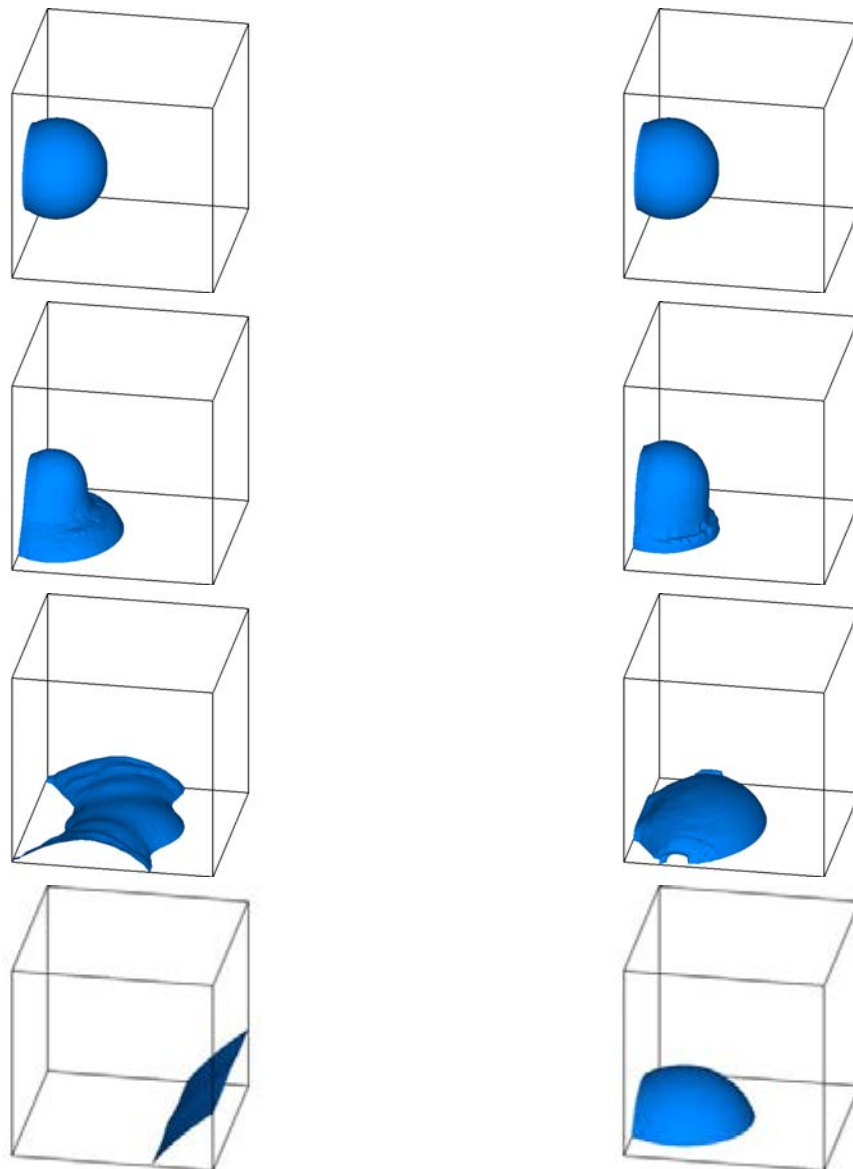


FIG. 6.4 – Effect of the channel wall contact angle on the migration of a droplet. (left)  $\theta_W = 50^\circ$  and (right)  $\theta_W = 70^\circ$ . From top to bottom,  $t = 0s$ ,  $t = 5.39ms$ ,  $t = 6.37ms$  and  $t = 19.6ms$ .

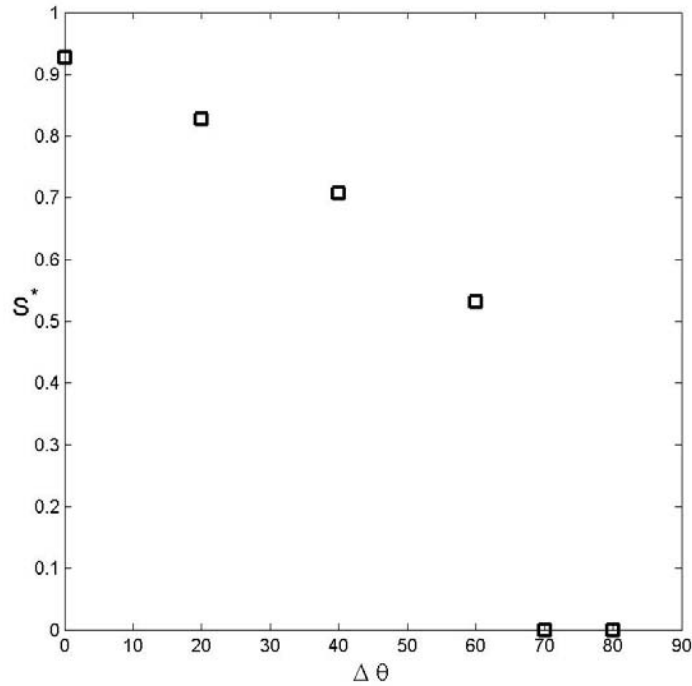


FIG. 6.5 – Evolution of the final surface wet with the liquid versus the normalized contrast of wettability.

diminishes the efficiency of the capillary mechanism for the migration.

Figure 6.6 compares the migration of the droplet under the three temperature conditions at the same instants. The droplet is initially released at  $Z_0 = 0.375mm$ . The temperature is found to have a strong effect mostly attributed to the decrease of the liquid viscosity when the temperature increases. At  $T = 0^\circ C$ , the droplet is at the end of the simulation stabilized in the middle on the lower wall with no contact with the vertical walls. At  $T = 20^\circ C$  and  $T = 80^\circ C$  the complete migration is observed and the droplet's position is stabilized in contact with the wall facing the GDL. Consequently, the increase of the temperature induces a better efficiency of the migration, the consequence of the viscosity decrease being dominant compared to the consequence of the surface tension decrease. This result stresses the importance to consider the effect of the temperature on the fuel cell performance which can be different in normal condition of working in comparison with an initial condition imposed by the ambient temperature.

### 6.1.5 Effect of coalescence

Finally we consider the effect of the coalescence of two droplets on the migration. Yang *et al.* (2004) have shown in recent experiments that drops, during their formation on the GDL wall, can appear and grow until coalescence before their migration to the lower or upper walls. We consider two situations under normal gravity conditions. Two identical droplets of radius

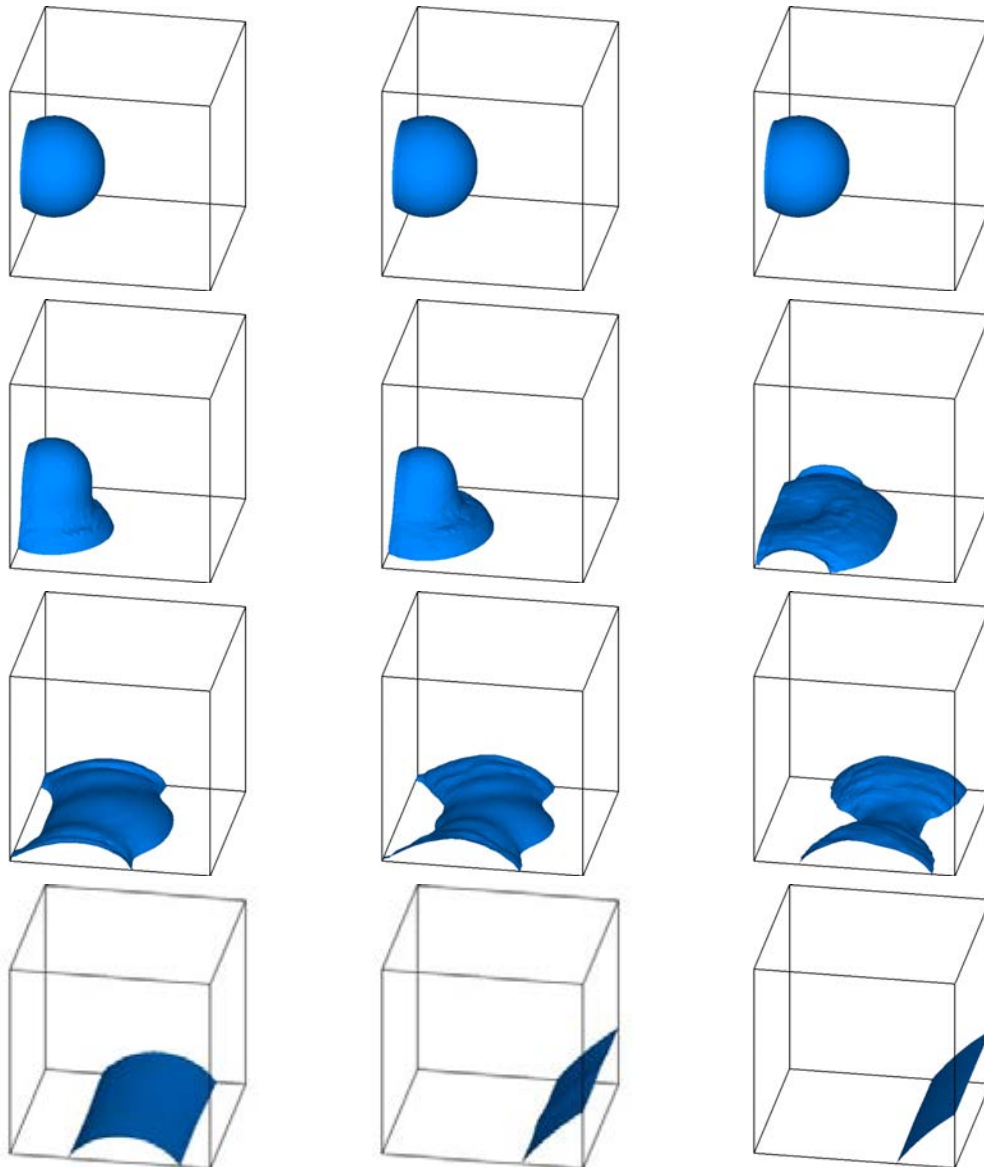


FIG. 6.6 – Effect of the temperature on the migration of a droplet. (left)  $T = 0^\circ\text{C}$ , (center)  $T = 20^\circ\text{C}$  and (right)  $T = 80^\circ\text{C}$ . From top to bottom,  $t = 0\text{s}$ ,  $t = 5.39\text{ms}$ ,  $t = 6.37\text{ms}$  and  $t = 19.6\text{ms}$ .

$R_0 = 0.198mm$  are chosen so that their volume is the half volume of the droplets studied in the previous sections. They are located at  $Z_0 = 0.775mm$  so that their interface are in contact. Under the surface tension effect that tends to minimize the surface energy, the two droplets coalesce. During the coalescence the resulting droplet touches the upper wall and migrates. The corresponding simulation is reported in figure 6.7. The coalescence situation is compared with the migration of a unique droplet of equivalent volume placed at the same vertical position. The comparison shows that after the coalescence, the resulting droplet migrates following the same dynamics. The effect of the coalescence is to accelerate the liquid migration in the channel because droplets of lower radius can also be evacuated after their coalescence with other droplets.

The qualitative comparison between the present simulations and the visualizations of Yang *et al.* (2004) is shown in figure (6.8) for the final state after the coalescence, the migration and the stabilization. One notices the good agreement between experimental visualizations and simulations concerning the shape of the drop. Let us note that, in the experiment of Yang *et al.* (2004), measurements of static contact angle for each wall of the channel were not made and we used in our simulation.

## 6.2 Bilan : capture ou migration ?

Nous venons de montrer dans les conditions d'utilisation de la pile l'effet des principaux paramètres sur la migration des gouttelettes formées sur la GDL. Nous avons ainsi illustré l'effet de la position initiale  $Z_0$  de la goutte, celui de la gravité, celui de la mouillabilité des parois du canal, l'effet de la température et celui de la coalescence. Nous souhaitons maintenant revenir sur certains résultats présentés dans la section précédente.

### 6.2.1 Effet de la gravité

Nous avons montré que la goutte connaît la même évolution quelle que soit sa hauteur d'origine et l'intensité du champ de gravité. Cela montre bien que l'énergie nécessaire à la migration de la GDL à l'arête opposée provient de la différence de mouillabilité entre la GDL et la paroi, et non de l'énergie cinétique acquise lors de la descente de la GDL sous l'effet de la gravité.

Ce résultat peut être anticipé en estimant le nombre d'Eotvos caractéristiques de la comparaison des effets gravitaires et capillaires à l'intérieur d'un canal :

$$E_o = \frac{\rho_L g H^2}{\sigma} \simeq 0,14$$

La discussion de cet effet peut être également menée en comparant l'énergie potentielle de la goutte  $E_p \simeq \rho_L V_g g Z_0$  à l'énergie capillaire de la goutte  $E_\sigma \simeq \sigma S_g$ , où  $S_g$  est l'aire de la surface de la goutte et  $V_g$  son volume. La surface et le volume s'écrivent pour une portion de sphère de

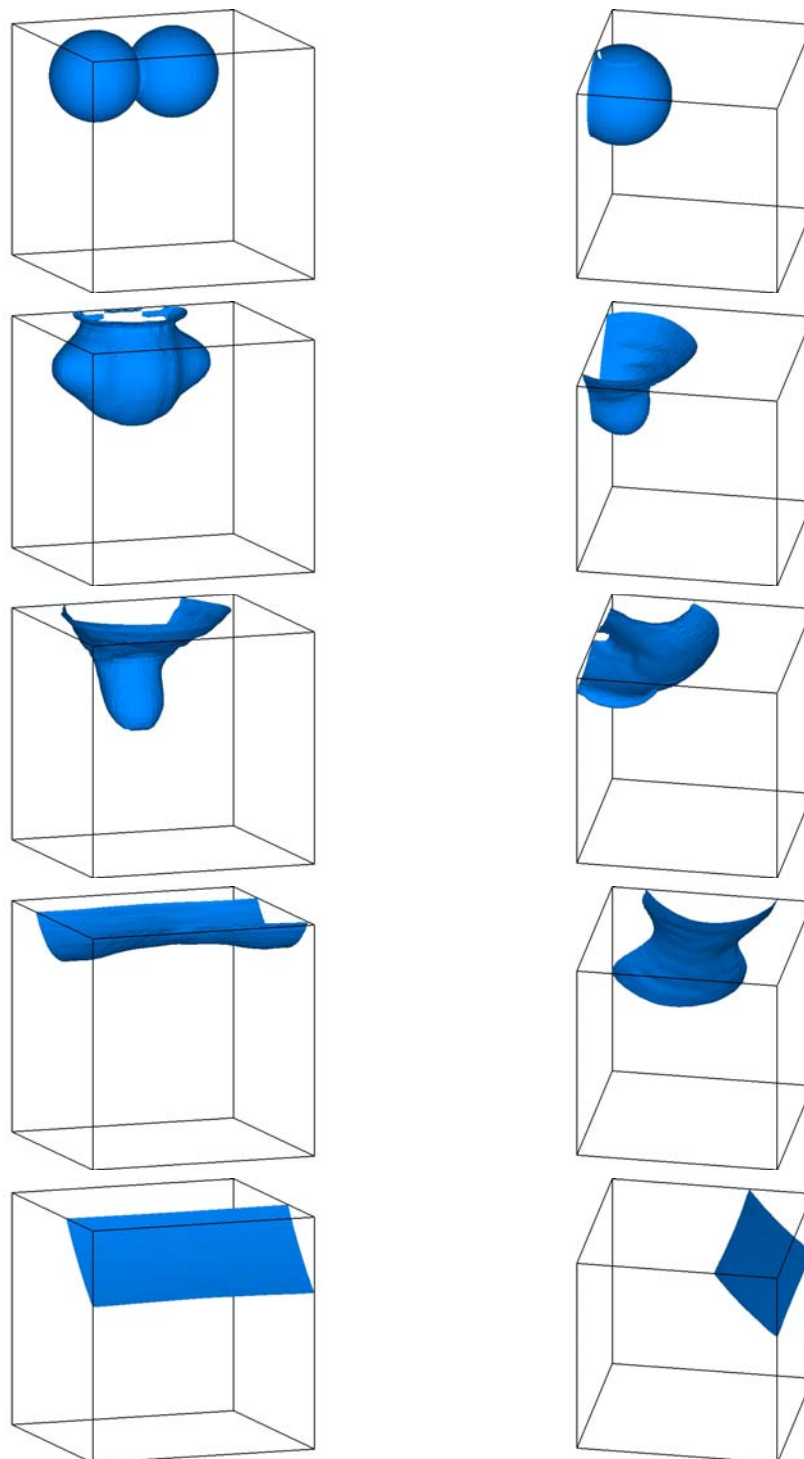


FIG. 6.7 – Effect of the coalescence of two droplets on the migration. (left) migration after coalescence, (right) migration of a droplet of equivalent total volume under the same conditions. From top to bottom,  $t = 0s$ ,  $t = 0.49ms$ ,  $t = 0.98ms$ ,  $t = 1.96ms$  and  $t = 19.6ms$



FIG. 6.8 – Comparison between visualizations of Yang *et al.* (2004) and present simulation with the JADIM code with  $\theta_{GDL} = 120^\circ$  and  $\theta_W = 30^\circ$ .

rayon  $R$  faisant un angle  $\theta$  avec la paroi :

$$S_g = 2\pi R^2(1 - \cos \theta) \quad (6.1)$$

$$V_g = \frac{\pi}{3} R^3(1 - \cos \theta)^2(2 + \cos \theta) \quad (6.2)$$

Finalement, le rapport des deux énergies donne un nombre de Eötvös :

$$\frac{E_p}{E_\sigma} = \frac{\rho L g Z_0 R_0}{6\sigma} (1 - \cos \theta_{GDL})(2 + \cos \theta_{GDL}) \quad (6.3)$$

Pour le cas de la pile en prenant  $Z_0 \simeq H$  nous obtenons  $E_p/\Delta E_\sigma \simeq 10^{-2}$  ce qui montre bien que l'énergie capillaire domine fortement l'énergie potentielle. Cela confirme que la dynamique de la goutte est entièrement dominée par les forces capillaires et que l'énergie potentielle est négligeable.

### 6.2.2 Nature de la migration

Nous avons vu que la migration complète de la goutte n'est pas le seul scénario possible : deux autres comportements existent. La goutte peut ne pas avoir acquis suffisamment d'énergie pour atteindre l'arête opposée et elle termine alors sa course en chemin en s'immobilisant sur la paroi inférieure, entre la GDL et la paroi opposée sous l'effet de la dissipation visqueuse. Elle peut également ne pas avoir l'énergie suffisante pour se dégager de la GDL et migrer. Elle reste alors piégée par l'arête formée par la GDL et la paroi inférieure.

Nous avons constaté que ces trois évolutions possibles dépendent fortement de la température et de la différence de mouillabilité entre la GDL et la paroi inférieure. La différence de mouillabilité définit l'intensité de l'énergie que la goutte va acquérir pour sa migration. La température aura plusieurs influences : d'une part son augmentation diminue la viscosité du liquide et donc la dissipation subie par la goutte lors de son mouvement qui migre plus facilement. Et d'autre part son augmentation diminue également la tension de surface et donc l'énergie cinétique d'origine

capillaire qui permet la migration. Or, la variation de viscosité entre  $T = 0^\circ C$  et  $T = 80^\circ C$  correspond à une diminution de 80% alors que la tension de surface ne diminue que de 20%. Donc l'effet essentiel de l'augmentation de la température est de diminuer la dissipation visqueuse et de favoriser la migration de la goutte comme le montre nettement la figure 6.6 .

La figure 6.10 donne l'évolution de la hauteur à l'équilibre  $h^* = Y_{GDL}/R_0$  de GDL mouillée par la goutte adimensionnée par le rayon initial  $R_0$  de la goutte sur la GDL (figure 6.1) en fonction de la différence de mouillabilité  $\Delta\theta = \theta_{GDL} - \theta_w$ . Les résultats des simulations sont présentés et comparés à une courbe théorique (équation (6.4) présenté ci-dessous) correspondant à une goutte piégée dans l'arête. Celle-ci est présentée dans le chapitre 7 (figure 7.3 et équation 7.2) et nous y renvoyons le lecteur pour les détails de calcul. La relation géométrique entre la

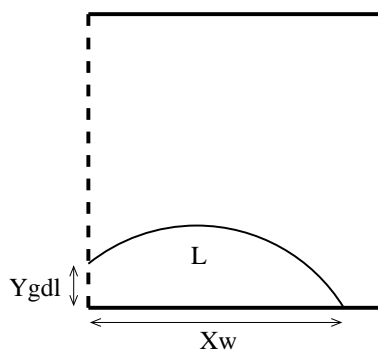


FIG. 6.9 – Situation d'une goutte piégée dans l'arête formée par la GDL et la paroi du canal.

hauteur de GDL mouillée  $Y_{GDL}$  et la longueur de paroi mouillée  $X_w$  (figure 6.9) s'écrit :

$$Y_{GDL} = X_w \cdot \frac{\sin \theta_{GDL} - \cos \theta_w}{\sin \theta_w - \cos \theta_{GDL}} \quad (6.4)$$

où  $X_w$  est déduit de l'égalité  $V_i = V_f$  entre les expressions du volume de la goutte dans sa configuration initiale  $V_i$  et sa configuration "piégée dans l'arête"  $V_f$ , où :

$$V_i = \frac{\pi}{3} R_0^3 (1 - \cos \theta_{GDL})^2 (2 + \cos \theta_{GDL}) \quad (6.5)$$

$$V_f = \left[ R^2 (\theta_w - \sin \theta_w \cos \theta_w) - \left[ \left( \theta_w - \frac{\pi}{4} \right) \frac{(2R \sin(\pi - \theta_w) - X_w)^2}{(\sin \theta_w - \cos \theta_w)^2} - \frac{(2R \sin(\pi - \theta_w) - X_w)^2 * \cos \theta_w}{(\sin \theta_w - \cos \theta_w)} \right] \right]$$

où  $R = \frac{X_w}{(\sin \theta_w - \cos \theta_{GDL})}$  (6.6)

La relation 6.4 impose une condition géométrique pour que la goutte soit piégée :

$$\theta_{GDL} - \theta_w < \frac{\pi}{2} \quad (6.7)$$

Il existe donc une condition géométrique "statique" pour que la goutte soit piégée par l'arête GDL/canal. A mesure que la différence de mouillabilité  $\Delta\theta$  augmente et approche de  $\pi/2$ , la



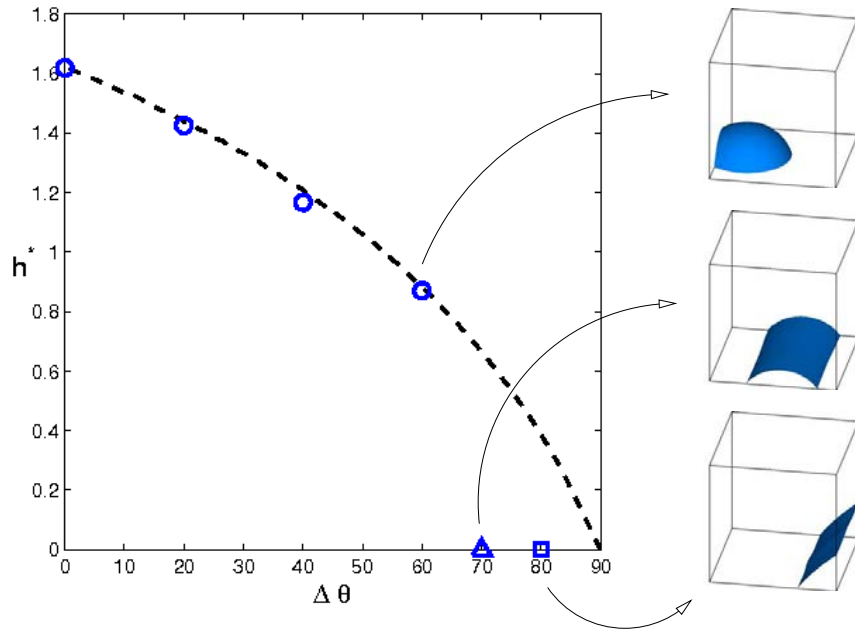


FIG. 6.10 – Evolution de la hauteur de liquide adimensionnée  $h^*$  mouillant la GDL en fonction de la différence de mouillabilité  $\Delta\theta$  pour  $T = 20^\circ C$  ( $La = 18000$ ). O : Goutte piégée dans l'arête GDL/paroi. Δ : Goutte n'ayant pas rejoint la paroi opposée. □ : Goutte ayant migrée jusqu'à l'arête opposée. (- -) : relation 6.4 .

condition géométrique est moins contraignante et la goutte peut s'échapper à l'arête si l'énergie cinétique acquise est suffisante. En effet, la figure 6.10 montre que la goutte peut migrer alors qu'elle peut géométriquement être piégée. Il existe donc une condition d'ordre "dynamique" qui définit l'énergie cinétique motrice d'origine capillaire nécessaire pour franchir l'arête. De plus, nous avons vu qu'il existe des situations pour lesquelles, après s'être libérée de l'arête, l'énergie cinétique acquise par différence de mouillabilité est dissipée et la goutte peut s'arrêter avant d'atteindre l'arête opposée. Pour évaluer le rapport des effets visqueux aux effets inertiels, on trace la configuration finale de la goutte en fonction de la différence de mouillabilité  $\Delta\theta$  et du nombre de Laplace  $La = \rho_L \sigma R_0 / \mu^2$  où  $R_0$  est le rayon initial de la goutte : figure 6.11. Rappelons que la variation du nombre de Laplace résulte ici de la variation de la température de  $T = 0^\circ C$  à  $80^\circ C$ . Lorsque la température augmente, le nombre de Laplace augmente fortement, dû essentiellement à la diminution de la viscosité du liquide. La figure 6.11 montre que la goutte migre pour des  $\Delta\theta$  plus faibles à mesure que le nombre de Laplace (i.e. la température) augmente. Cela confirme le fait que la température et donc la dissipation joue un rôle essentiel dans la condition "dynamique" de piégeage de la goutte.

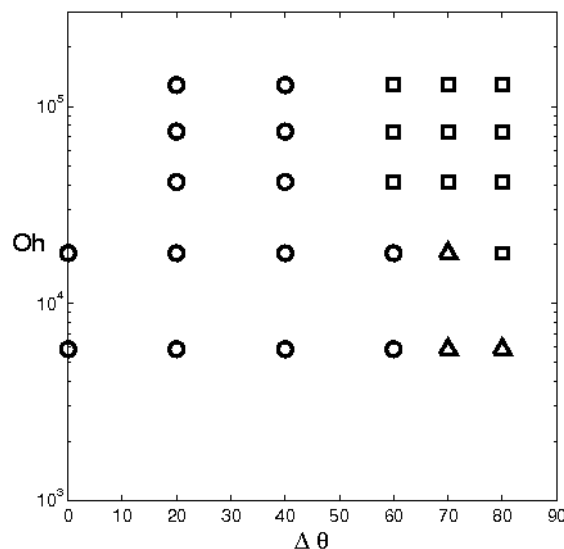


FIG. 6.11 – Différentes configurations finales de goutte en fonction de la différence de mouillabilité  $\Delta\theta$  et du nombre de Laplace  $La$ . O : Goutte piégée dans l'arête GDL/paroi.  $\Delta$  : Goutte n'ayant pas rejoint la paroi opposée.  $\square$  : Goutte ayant migrée jusqu'à l'arête opposée.

### 6.2.3 Vitesse de migration

Une des questions posées par ces simulations concerne la caractérisation de la vitesse d'avancée  $U$  de la goutte suite au passage de la discontinuité du mouillage. L'évolution temporelle de la vitesse de déplacement horizontal de la ligne triple pour  $La = 18000$  et  $\Delta\theta = \theta_{GDL} - \theta_w = 70^\circ$  est reportée sur la figure 6.12. On constate que la goutte atteint quasiment instantanément une vitesse maximale qui décroît ensuite de manière exponentielle. Le même type d'évolution est observé dans tous les cas de migration. La figure 6.12 reporte le maximum de vitesse en fonction de  $\Delta\theta$  pour les différentes situations étudiées dans la section précédente. On constate que le maximum de vitesse croît avec  $\Delta\theta$  tout en étant sensiblement dépendant de la viscosité de la goutte. Celle-ci est de l'ordre de  $0,5m/s$  pour les conditions de mouillage considérées.

L'analyse de ce problème est rendue délicate par la géométrie de la transition qui s'effectue dans un angle et non pas sur une ligne plane. Rappelons que dans cette approche la dynamique de l'angle de contact n'est pas prise en compte, pas plus que ne l'est l'hystérésis. Nous sommes dans la situation d'une interface dont l'angle de mouillage  $\theta$  est constant pour une paroi donnée. Nous discutons dans la suite l'estimation de la vitesse de migration de la goutte.

### Approche énergétique globale

Cette approche consiste à calculer la variation de l'énergie de surface entre une goutte placée à l'équilibre sur la GDL et sur la paroi bipolaire. Une première estimation consiste à supposer

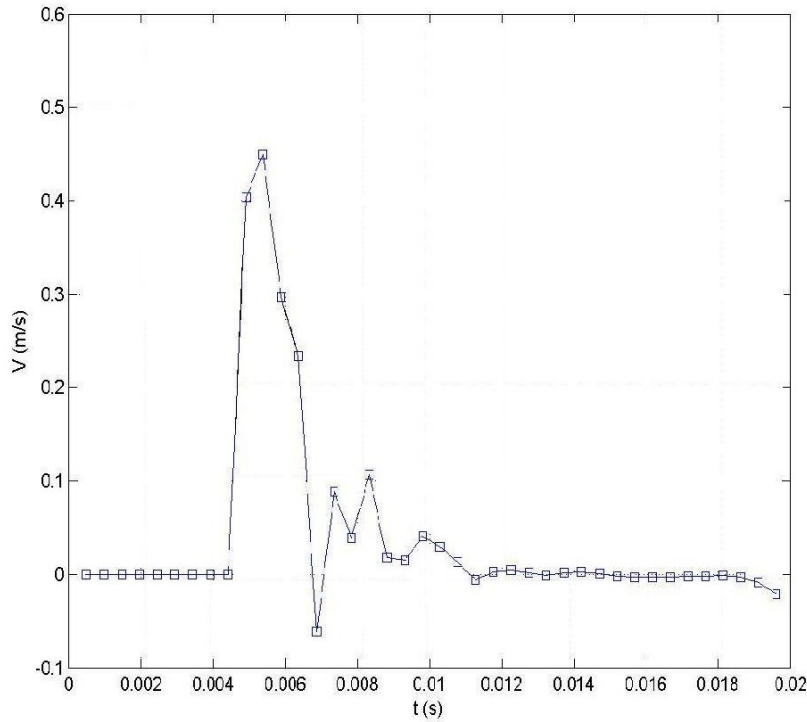


FIG. 6.12 – Evolution temporelle de la vitesse horizontale de la goutte après le passage de l'arête formée par la GDL et la paroi bipolaire  $La = 18000$  et  $\Delta\theta = \theta_{GDL} - \theta_w = 70^\circ$

que cette variation est responsable de la migration de la goutte. Ainsi en négligeant les effets visqueux aux premiers instants de la migration, il est possible d'en déduire l'énergie cinétique de la goutte c'est à dire sa vitesse. Un tel bilan fera donc intervenir un nombre de Weber. Nous considérerons la forme de la goutte à l'équilibre qui est celle d'une calotte sphérique. Son volume  $V_g$  est sa surface  $S_g$  sont donnés par les relations (6.2) et (6.1) en fonction de l'angle de mouillage de la paroi.

La conservation du volume permet d'exprimer la variation du rayon de courbure de la goutte et d'en déduire la variation de l'énergie de surface de la goutte entre la GDL et la paroi bipolaire caractérisées respectivement par les angles  $\theta_{GDL}$  et  $\theta_w$  :

$$\Delta E_\sigma = E_\sigma^{GDL} \left( \frac{(1 - \cos \theta_{GDL})^{1/3} (2 + \cos \theta_{GDL})^{2/3}}{(1 - \cos \theta_w)^{1/3} (2 + \cos \theta_w)^{2/3}} - 1 \right) \quad (6.8)$$

L'évolution de  $\Delta E_\sigma / E_\sigma^{GDL}$  est reportée sur la figure 6.14 en fonction de la différence de mouillabilité  $\Delta\theta = \theta_{GDL} - \theta_w$  pour  $\theta_{GDL} = 130^\circ$  correspondant à la mouillabilité considérée dans ce chapitre ainsi que pour  $\theta_{GDL} = 145^\circ$  qui est la mouillabilité mesurée sur un échantillon de GDL au chapitre 4.

Nous constatons que l'énergie surfacique de la goutte diminue avec l'augmentation de  $\Delta\theta$

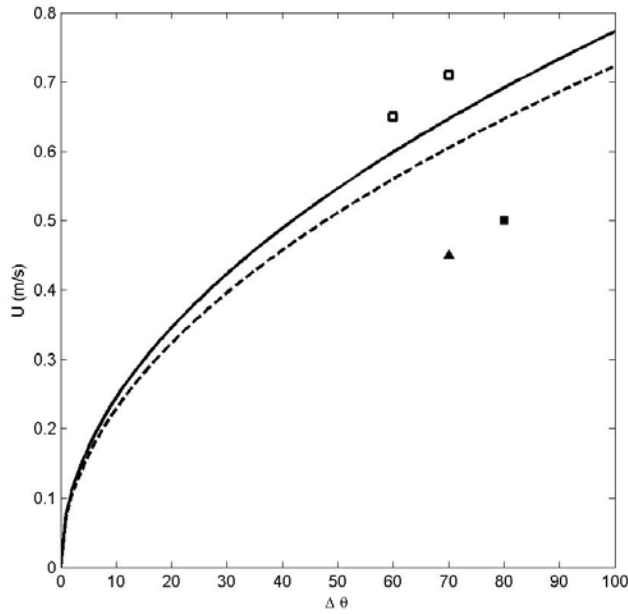


FIG. 6.13 – Vitesse de migration de la goutte après le passage de l’arête formée par la GDL et la paroi bipolaire.  $\square$  et  $\blacksquare$  migration jusqu’à la paroi opposée pour  $La = 40000$  et  $La = 128000$ .  $\blacktriangle$  arrêt avant le contact avec la paroi opposée pour  $La = 128000$ . – relation (6.11) pour  $La = 18000$ . – – relation (6.11) pour  $La = 128000$ .

pour atteindre un minimum. On note ensuite que  $\Delta E_\sigma$  augmente sous l’effet de l’étalement de la goutte qui accroît l’énergie de surface. Il est possible de considérer l’évolution de  $\Delta E_\sigma$  pour des différences modérées de mouillabilité. A partir de (6.8) on obtient

$$\Delta E_\sigma \simeq E_\sigma^{GDL} \frac{\cos \theta_{GDL} \sin \theta_{GDL}}{(1 - \cos \theta_{GDL})(2 + \cos \theta_{GDL})} \Delta\theta \quad (6.9)$$

On remarque que le signe de  $\Delta E_\sigma$  est directement lié à la valeur de  $\cos \theta_{GDL}$ . Il est ainsi négatif (diminution d’énergie de surface) pour une paroi de GDL hydrophobe.

En considérant que la diminution d’énergie de surface est responsable de la migration, l’énergie cinétique transmise à la goutte sur la paroi bipolaire s’écrit alors :

$$\frac{1}{2} \rho V_g U^2 = E_\sigma^{GDL} \frac{|\cos \theta_{GDL}| \sin \theta_{GDL}}{(1 - \cos \theta_{GDL})(2 + \cos \theta_{GDL})} \Delta\theta \quad (6.10)$$

ce qui fait apparaître un nombre de Weber de migration d’où l’on peut exprimer la vitesse de migration :

$$U = \sqrt{12 \frac{\sigma}{\rho R_0} \frac{\sqrt{|\cos \theta_{GDL}| \sin \theta_{GDL}}}{(1 - \cos \theta_{GDL})(2 + \cos \theta_{GDL})}} \Delta\theta^{1/2} \quad (6.11)$$

On constate ainsi que la vitesse de migration induite par la différence de mouillabilité évolue comme  $\Delta\theta^{1/2}$ . La relation (6.11) est reportée sur la figure 6.13 qui montre que ce bilan énergétique

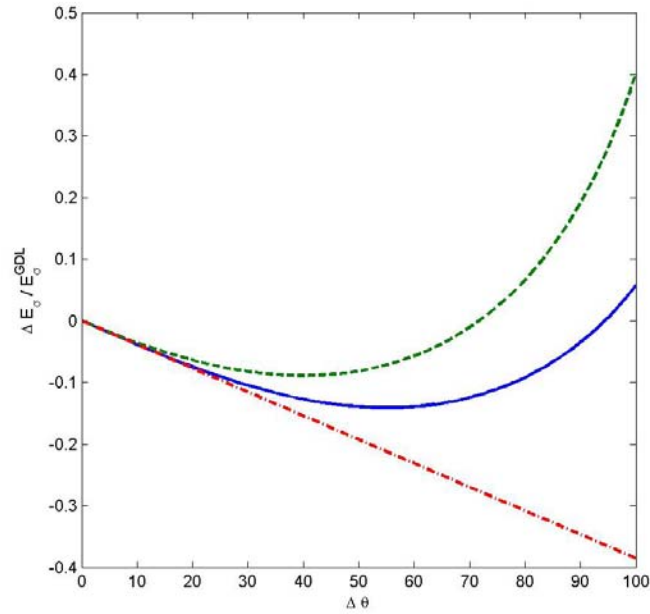


FIG. 6.14 – Evolution de la différence relative d'énergie de surface  $\Delta E_\sigma / E_\sigma^{GDL}$  en fonction de la différence de mouillabilité  $\Delta\theta$ . — : relation (6.8) pour  $\theta_{GDL} = 145^\circ$ . - - - : relation (6.8) pour  $\theta_{GDL} = 130^\circ$ . - . - relation (6.9) pour  $\theta_{GDL} = 130^\circ$ .

permet d'avoir une estimation très intéressante de la vitesse de la ligne triple. On constate également qu'il ne permet pas de décrire les variations observées avec le nombre de Laplace qui varie essentiellement via les variations de la viscosité.

Malgré le très bon accord donné par la relation (6.11), on constate que ce bilan d'énergie pose problème si l'on regarde l'évolution de l'énergie de surface pour les grandes différences de mouillage (figure 6.14) alors que pour de grands contrastes de mouillabilité il est bien entendu que la migration est toujours présente.

### Rupture de barrage capillaire

Pour mieux comprendre la mise en mouvement de la ligne triple nous reportons ici une simulation 2D qui avait été faite au préalable par curiosité après l'implémentation numérique de l'angle de contact statique. La configuration regardée est celle d'une goutte dont la forme initiale est un demi-disque et qui est positionnée à cheval sur une discontinuité de mouillage sur une paroi plane dans un champ de gravité nul. Les angles sont ici de  $30^\circ$  à gauche et de  $150^\circ$  à droite. L'interface a donc initialement un angle de  $90^\circ$  qui est hors équilibre dans les deux situations. Les paramètres physiques sont  $\rho = 1000 \text{ kg/m}^3$ ,  $\mu = 0,01 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ ,  $\sigma = 0,072 \text{ N/m}$ ,  $g = 0 \text{ m/s}^2$ ,  $R_0 = 1 \text{ cm}$  pour une résolution régulière de 40 mailles par rayon soit  $\Delta x = \Delta y = 0,25 \text{ mm}$ .

La figure 6.15 présente l'évolution de la goutte à partir de cette condition initiale jusqu'à sa position d'équilibre. La goutte est initialement un demi-disque (rayon  $R_0$ ) et la pression interne est imposée par le saut de pression capillaire qui est en 2D  $\sigma/R_0$ . La goutte est déposée sur une paroi sur laquelle l'interface est hors équilibre. Elle évolue de manière instantanée pour rétablir l'angle d'équilibre. La courbure de l'interface est alors changée au niveau du point de contact et ne peut plus localement résister à la pression capillaire générant la propagation de l'interface de manière analogue à la propagation de l'onde de rupture instantanée de barrage. La figure 6.15 montre que durant les premiers instants le front avance avec une interface qui respecte l'angle imposé par la paroi et qui présente la particularité d'être plane c'est à dire sans courbure. Le tracé de l'évolution temporelle de la position du front montre que celui-ci évolue de manière linéaire dans le temps montrant la propagation à une vitesse constante de l'ordre de  $0,15m/s$ .

Dans le cas de la rupture de barrage l'évolution temporelle du front de l'onde est donnée par  $x(t) = 2\sqrt{gH}t$  où  $H$  est la profondeur initiale du réservoir (de Saint-Venant (1871)). Ainsi en notant  $P_H = \rho gH$  la pression hydrostatique au fond du réservoir, la célérité de l'onde est  $c = 2\sqrt{P_H/\rho}$ . Dans la situation considérée, une analogie simple peut être réalisée en considérant que la charge initiale est imposée par la pression capillaire induite par la courbure de l'interface soit  $P_H = \sigma/R_0$  générant une propagation à la célérité capillaire :

$$U = 2\sqrt{\frac{\sigma}{R_0\rho}}$$

L'expression précédente donne pour les paramètres de la simulation  $U = 0,17m/s$  ce qui est en bon accord avec la simulation numérique pour laquelle  $U \simeq 0,15m/s$ .

Pour la situation 3D qui est l'objet de ce chapitre, la "charge" capillaire initiale est donnée par  $P_H = 2\sigma/R_0$ , conduisant à une célérité capillaire :

$$U = 2\sqrt{\frac{2\sigma}{R_0\rho}} \quad (6.12)$$

Pour les simulations reportées dans ce chapitre, on trouve  $U \simeq 0.48m/s$  ce qui est également cohérent avec les valeurs numériques reportées sur la figure 6.13.

#### 6.2.4 Synthèse

Les deux approches présentées ci-dessus ont permis de proposer une expression pour la vitesse de propagation de la ligne triple après avoir franchi la discontinuité de mouillage des paroi. On observe ainsi que la vitesse de propagation est proportionnelle à la célérité d'une onde capillaire :

$$U \sim \sqrt{\frac{\sigma}{\rho R_0}} f(\theta_{GDL}, \theta_w)$$

Ce résultat aurait pu être trouvé directement à l'aide de l'analyse dimensionnelle en identifiant la longueur caractéristique impliquée dans la propagation de la ligne triple. Les simulations

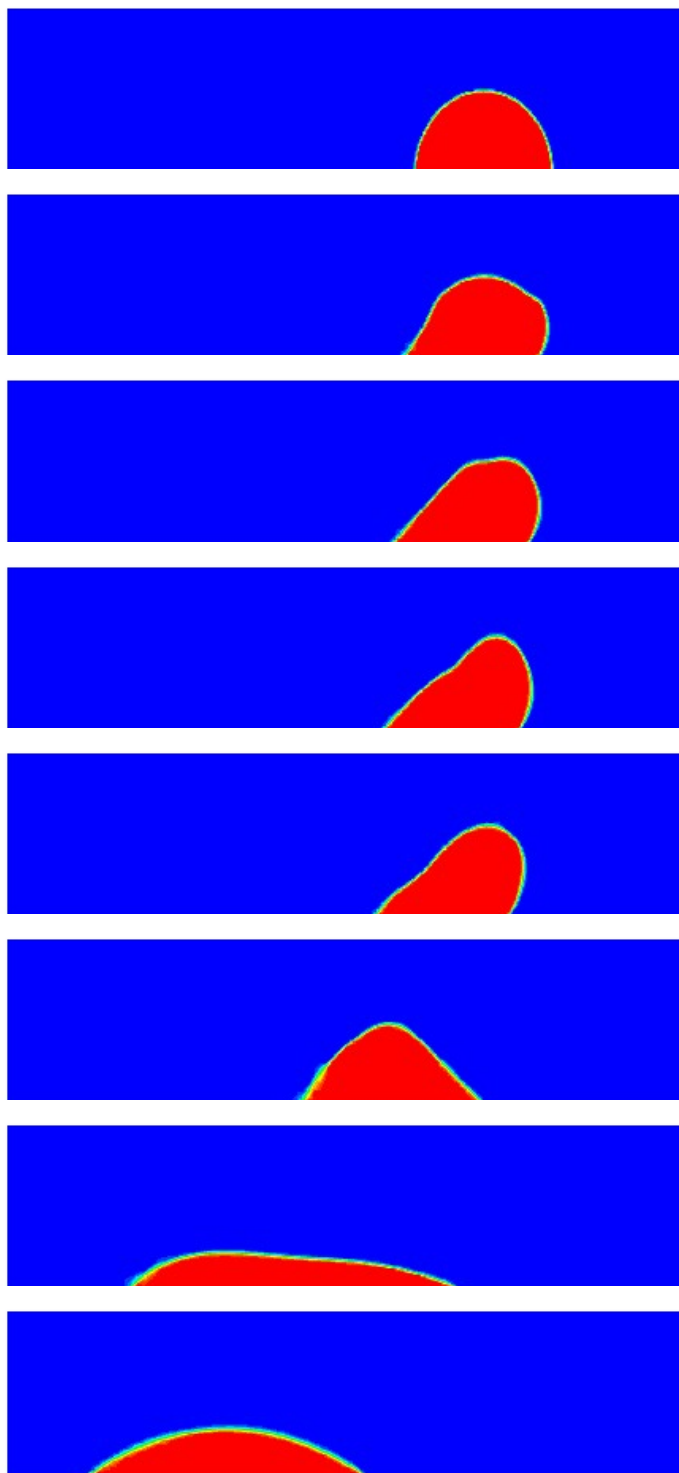


FIG. 6.15 – Evolution du goutte 2D initialement à cheval sur une discontinuité de mouillage. De haut en bas  $t = 0s$ ,  $t = 0,0125s$ ,  $t = 0,025s$ ,  $t = 0,0375s$ ,  $t = 0,05s$ ,  $t = 0,125s$ ,  $t = 0,25s$  et  $t = 0,5s$

reportées ici pour la migration dans l'arête d'un canal de pile et pour la migration d'une goutte 2D sur une plaque plane montrent que la longueur d'onde de cette onde capillaire est le rayon de

courbure de la goutte initiale. On note au passage que le déplacement de la ligne triple n'est pas artificiellement imposé par la propagation d'ondes capillaires à l'échelle de la maille qui donnerait alors une célérité d'un ordre de grandeur supérieur.

### 6.3 Conclusion

Ce chapitre a été consacré dans un premier temps à la description de l'effet des principaux paramètres sur la migration des gouttelettes formées sur la GDL dans les conditions d'utilisations de la pile : position initiale de la goutte, gravité, mouillabilité des parois du canal, température et coalescence entre goutte. Il apparaît clairement que la gravité ne joue aucun rôle dans la dynamique des gouttes produites par la GDL. Les gouttes peuvent être soit piégées dans l'arête en contact avec la GDL ou dans l'arête opposée.

Les quelques résultats reportés dans ce chapitre ont également permis d'initier la discussion sur la vitesse de migration de goutte soumise à une discontinuité de mouillage. Les gouttes migrent toujours de la paroi non mouillante vers la paroi mouillante avec une vitesse donnée par la célérité de l'onde capillaire de longueur d'onde imposée par le rayon initial de la goutte. Remarquons que cette vitesse de migration est d'autant plus grande que la taille de la goutte est petite conduisant à des vitesses de migration largement supérieures à la vitesse de croissance de la goutte dans un canal de pile. L'étude doit être maintenant complétée pour préciser l'effet de la différence de mouillabilité dans cette migration.





## Chapitre 7

# Remplissage quasi-statique d'un canal de pile

### 7.1 Introduction

Nous nous intéressons ici au remplissage quasi-statique d'un canal de pile par l'eau produite. L'analyse des débits de production d'eau par la pile présentée en introduction montre qu'un canal de pile à combustible se remplit progressivement de liquide au point de présenter éventuellement un engorgement du canal en son extrémité. Nous souhaitons étudier dans ce chapitre la répartition spatiale des phases dans une section pour un taux de remplissage donné. Etant donné les propriétés de mouillage des parois, mais aussi le rapport de forme de la section, les configurations possibles peuvent présenter un intérêt important pour le dimensionnement des canaux. En effet, il importe d'évacuer une quantité importante de liquide tout en maximisant la surface non-mouillée de la GDL de manière à avoir un taux de transfert de gaz réactif optimal entre le canal et la zone de diffusion.

Comme nous l'avons montré dans le chapitre 1, la vitesse d'introduction de liquide à travers la paroi de la GDL  $V_{H_2O,in}$  est de l'ordre de  $\sim 10\mu m/s$ , alors que la vitesse moyenne débitante du liquide à la sortie du canal  $U_{LS}$  est de l'ordre de  $\sim 10cm/s$ . Ainsi,  $V_{H_2O,in}$  est très faible par rapport à  $U_{LS}$ , ce qui permet d'affirmer qu'à l'échelle des dizaines de centimètres de canal, le remplissage est un phénomène qui peut être considéré comme quasi-statique. Dans ces conditions, étudier l'évolution spatiale des phases d'un canal 3D peut être ramené à un problème 2D dans chaque section. Dans cet esprit, nous étudions ici les différentes répartitions spatiales possibles des phases dans une section du canal pour différentes quantités de liquide. L'intérêt de ce type d'approche est d'analyser l'influence des angles de contact et du rapport de forme de la section.

## 7.2 Configurations spatiales des phases dans un section carrée

Nous nous intéressons ici au cas traditionnel d'une section carrée. A partir des configurations initiales possibles, nous étudions leur évolution pour ensuite voir les conditions d'existence de configurations particulières.

L'influence de la gravité vis à vis de la capillarité est évaluée par le nombre de Eötvös  $Eo = \rho_L g H^2 / \sigma \simeq 0,1$  pour une interface eau/air dans un canal de section  $H = 1\text{mm}$ . La capillarité domine ici fortement la gravité : l'interface garde une courbure constante et vérifie aux parois les angles de mouillage. Ces propriétés de mouillabilité des parois vont imposer au liquide, en fonction de la quantité de liquide dans la section, une configuration spatiale donnée. On s'intéresse ici à l'évolution de ces configurations spatiales à mesure que la quantité de liquide augmente. On définit par le taux de remplissage :

$$R_L = \frac{A_L}{A}$$

où  $A$  est la surface de la section et  $A_L$  la surface occupée par la phase liquide dans la section.

### 7.2.1 Configurations initiales

Nous considérons les angles statiques mesurés expérimentalement (cf. chapitre 4)  $\theta_w = 55-75^\circ$  pour les parois de la plaque bipolaire en acier et  $\theta_{GDL} = 145^\circ$  pour la GDL. Dans le chapitre précédent concernant la génération des gouttes sur la GDL et leur migration, nous avons montré que celles-ci ont tendance à se localiser essentiellement dans les arêtes opposées à la GDL. En effet, le moteur essentiel de la transition est la différence de mouillabilité entre la GDL et les parois, différence qui fournit l'énergie nécessaire à la migration totale des gouttes. Ainsi, ces deux arêtes sont les lieux qui permettent à la goutte de minimiser son aire interfaciale. Elles piègent le liquide malgré l'absence de la séparation gravitaire qui est dominée totalement par le phénomène de mouillage ( $Eo < 1$ ). Par conséquent, nous considérons le liquide initialement localisé dans une ou deux arêtes opposées à la GDL. La figure (7.1) présente dans ce contexte les deux conditions initiales que nous considérons.

### 7.2.2 Scénario de remplissage

A mesure que le liquide pénètre dans le canal, la quantité de liquide augmente et les configurations  $a1$  et  $a2$  (figure 7.1) évoluent à mesure que leur volume de liquide augmente. Cette évolution est résumée dans la figure 7.2.

Considérons dans un premier temps l'évolution de la répartition spatiale du liquide initialement piégé dans une seule arête correspondant à la configuration ( $a1$ ) (fig. 7.1). L'interface

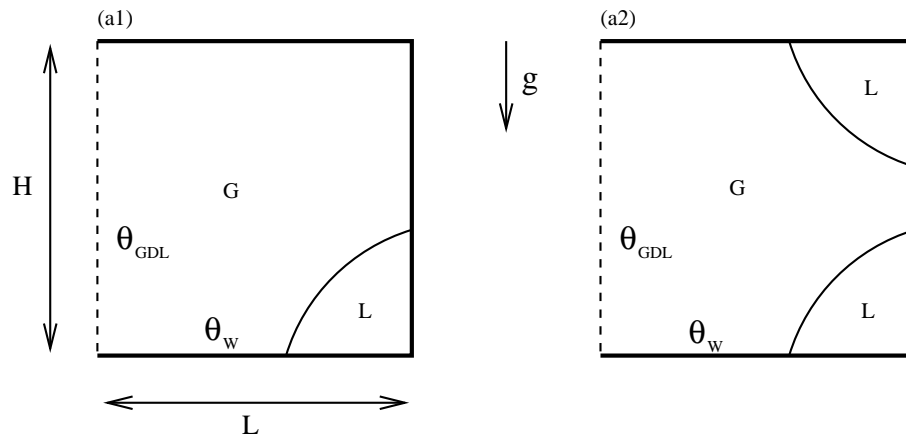


FIG. 7.1 – Les deux conditions initiales considérées (a1) et (a2) pour un canal de pile à section carrée. La facette en trait pointillé correspond à la GDL.

présente un arc de cercle dont les tangentes aux points triples forment l'angle  $\theta_w$  (fig. 7.2 : a1). Lorsque la quantité de liquide augmente, les points triples se déplacent jusqu'à ce que l'un touche une paroi perpendiculaire. S'il s'agit de la GDL, le point triple ne mouillera pas cette surface du fait de son caractère hydrophobe et aura tendance à rester sur la paroi (Nous verrons plus loin que ce n'est pas toujours le cas). S'il s'agit de la paroi supérieure, le point triple va mouiller rapidement cette surface pour vérifier l'angle  $\theta_w$  entre l'interface et la paroi.

Ce déplacement va provoquer un changement de configuration. Le liquide n'est plus piégé

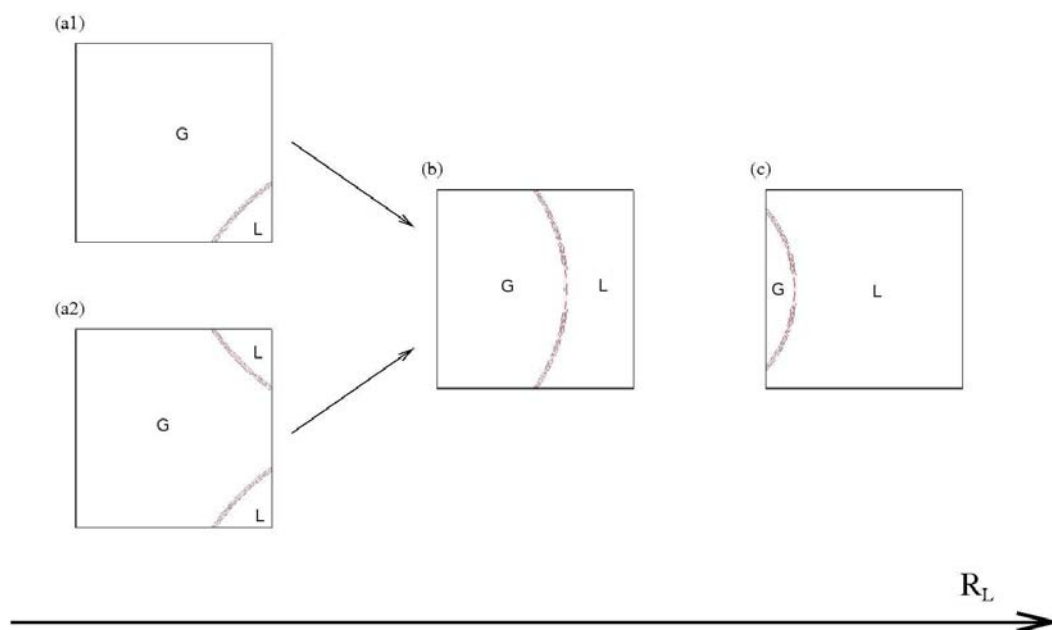


FIG. 7.2 – Séquence de configurations successives de une ou deux gouttes dans une section carrée de pile à combustible pour  $\theta_w < 90^\circ$ .

dans une arête mais vient mouiller toute la paroi opposée à la GDL comme illustrée par la configuration (b) de la figure 7.2. L'interface change alors de forme en fonction de l'angle de mouillage  $\theta_w$ .

Pour des parois mouillantes ( $\theta_w < 90^\circ$ ), ce qui est le cas dans un canal de pile, l'interface est convexe comme le montre la figure 7.2. Par contre si les parois sont non mouillantes ( $\theta_w > 90^\circ$ ) l'interface est alors concave de sorte que son milieu de l'interface est plus proche de la GDL que ne le sont les points triples et touche en premier la GDL c'est à dire avant les points triples. Cela provoquerait un changement de configuration et le liquide viendrait mouiller la GDL. Cette configuration est donc néfaste pour l'échange des gaz avec la zone de diffusion. Ainsi, une première conclusion de cette analyse est que la condition de mouillage des parois doit vérifier :

$$\theta_w < 90^\circ$$

Nous allons dans la suite nous placer dans cette situation. A mesure que la quantité de liquide augmente, les points triples se rapprochent de la GDL et viennent la toucher (fig. 7.2 : c). A la différence de la transition de configuration précédente (a-b), cette transition (b-c) ne se caractérise pas par un déplacement soudain des points triples. En effet, l'interface a déjà une tangente à la paroi qui correspond, en arrivant sur la GDL, à une situation hydrophobe. L'interface forme maintenant l'angle  $\theta_{GDL}$  et à mesure que la quantité de liquide augmente, la GDL est progressivement mouillée. Remarquons que le liquide vient mouiller la GDL alors qu'il remplit presque entièrement la section du canal. Ce scénario est idéal pour le fonctionnement de la pile à combustible puisqu'il retarde au maximum le mouillage de la GDL.

A noter que sur la figure 7.2.c, l'interface est centrée. On peut tout à fait imaginer que le système n'étant pas en réalité parfaitement symétrique que l'un des points triple reste piégé dans un des coin formé par la GDL et la paroi bipolaire hydrophile.

Concernant la condition initiale avec deux gouttes piégées (fig. 7.2 : a2), l'évolution n'est guère différente de ce que l'on vient de décrire. Seule la première transition (a-b) est modifiée : lorsque les deux gouttes se touchent, elles coalescent et provoquent la transition vers la configuration b.

### 7.2.3 Configurations conditionnelles

Un canal de pile peut permettre à d'autres configurations d'exister, plus défavorables pour le démoillage de la GDL, en fonction des angles de mouillage  $\theta_w$  et  $\theta_{GDL}$ .

**Configuration  $Cc1$  : goutte mouillant la GDL**

Une première configuration  $Cc1$  existe lorsque du liquide est piégé dans l'arête formée par la GDL et une paroi : figure 7.3. Cette configuration peut se présenter lorsque le liquide, lors de sa

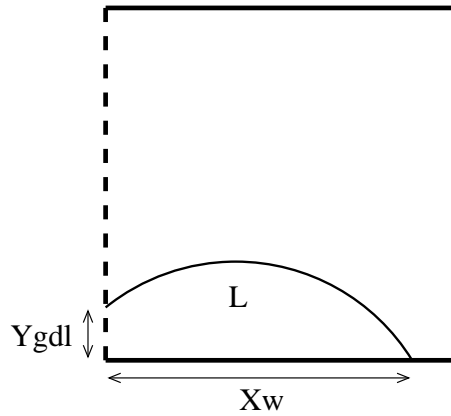


FIG. 7.3 – Configuration conditionnelle  $Cc1$ .

migration de la GDL vers une paroi de la plaque bipolaire, ne migre pas totalement pour se loger dans une arête opposée mais reste piégé dans l'arête GDL/paroi, comme nous l'avons montré dans le chapitre 6. Puisque l'énergie cinétique de migration de la goutte est acquise essentiellement par la différence de mouillabilité des parois, on imagine aisément que cette configuration ne peut exister que si la différence entre les angles statiques est faible. En effet, la condition géométrique pour que le liquide soit piégé est :

$$\Delta\theta = \theta_{GDL} - \theta_w < \frac{\pi}{2} \quad (7.1)$$

De plus, il est possible d'exprimer la relation reliant la hauteur de liquide mouillant la GDL en fonction de la longueur mouillant la paroi est donnée par :

$$Y_{GDL} = X_w \cdot \frac{\sin \theta_{GDL} - \cos \theta_w}{\sin \theta_w - \cos \theta_{GDL}} \quad (7.2)$$

où  $Y_{GDL}$  et  $X_w$  sont les longueurs mouillées de la GDL et de la paroi.

En effet, comme le montre la figure 7.4, l'interface de la goutte correspond à un arc de cercle de rayon  $R$  et de centre  $P_C$ , où l'intersection avec la GDL est notée  $P_{GDL}$  et l'intersection avec la paroi  $P_W$ .

Les coordonnées de  $P_C$  s'expriment :

$$X_C = -R \cos \theta_{GDL} \quad (7.3)$$

$$Y_C = -R \cos \theta_w \quad (7.4)$$

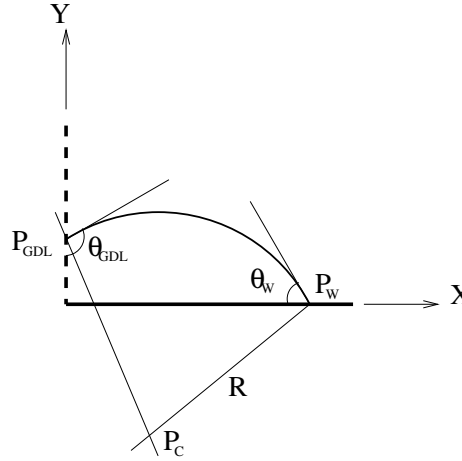


FIG. 7.4 – Données géométriques de la configuration conditionnelle *Cc1*.

où  $R = X_w / (\sin \theta_w - \cos \theta_{GDL})$ . La relation 7.2 s'obtient à partir de :

$$Y_{GDL} = Y_C + R \sin(\pi - \theta_{GDL}) \quad (7.5)$$

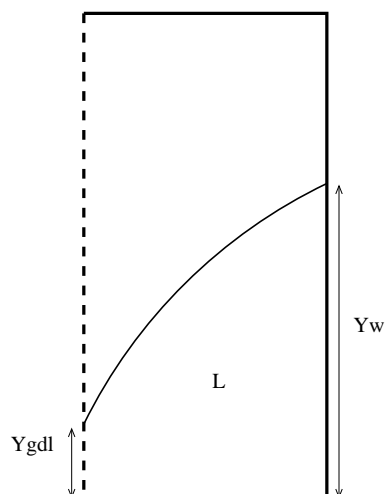
Pour un étalement maximum sur la paroi  $X_w \sim H$  avant le contact avec la paroi bipolaire opposée à la GDL (cf. figure 7.3) qui va induire la migration dans le coin opposé à la GDL (configuration (a1) de la figure 7.1), on trouve pour  $\theta_{GDL} \simeq 145^\circ$  et  $\theta_w \simeq 70^\circ$  que  $Y_{GDL}/H \simeq 0,13$ . On constate donc que même dans cette situation défavorable la GDL reste très faiblement mouillée.

D'autant que cette condition est ici considérée dans le cadre d'une évolution quasi-statique du remplissage de la section. Nous avons montré dans l'étude de la migration des gouttes que l'inertie acquise au passage de l'arête peut être suffisante pour empêcher la capture de la goutte pour  $\Delta\theta$  comprise entre  $70^\circ$  et  $90^\circ$ . Cette influence 'dynamique' rend impossible tout piégage de la goutte pour cette gamme d'hystérésis.

### Configuration *Cc2* : ménisque entre la GDL et la paroi opposée

Une autre configuration *Cc2* est possible pour laquelle le liquide mouille la GDL ainsi que la paroi opposée comme illustré par la figure 7.5. Cette configuration est donc dommageable pour le fonctionnement de la pile puisque la GDL est mouillée pour des taux de remplissage qui peuvent être faibles (nous étudierons cette configuration plus loin). Comme le montre la figure 7.5, elle peut être présente préférentiellement dans les sections "hautes" ( $H > L$ ).

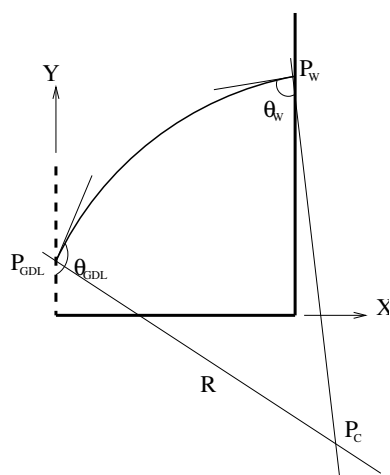
En fonction des angles de contact, l'interface sera concave si la condition  $\theta_w + \theta_{GDL} > \pi$ , ou convexe dans le cas contraire. La longueur de GDL mouillée maximale  $Y_{GDL}$  est atteinte lorsque

FIG. 7.5 – Configuration conditionnelle  $Cc2$ .

le point triple localisé sur la paroi opposée  $Y_w = H$  touche la paroi supérieure :

$$Y_{GDL} = H + L \frac{\sin \theta_w - \sin \theta_{GDL}}{\cos \theta_w + \cos \theta_{GDL}} \quad (7.6)$$

En effet, comme précédemment, l'interface est un arc de cercle de rayon  $R$  et de centre  $P_C$  : figure 7.6. L'intersection avec la GDL est notée  $P_{GDL}$  et l'intersection avec la paroi  $P_W$ . Les

FIG. 7.6 – Données géométriques de la configuration conditionnelle  $Cc2$ .

coordonnées du centre de l'arc de cercle sont :

$$X_C = -R \cos \theta_{GDL} \quad (7.7)$$

$$Y_C = Y_{GDL} - R \sin \theta_{GDL} \quad (7.8)$$



où  $R = -L (\cos \theta_x + \cos \theta_{GDL})$ . La relation (7.6) est obtenue à partir de :

$$Y_{GDL} = Y_w + R(\sin \theta_{GDL} - \sin \theta_w) \quad (7.9)$$

Pour  $H = 2L$ ,  $\theta_w = 70^\circ$  et  $\theta_{GDL} = 145^\circ$ , nous obtenons  $Y_{GDL}/H = 0,65$ .

### 7.3 Etude du canal de pile

Après avoir présenté les scénarii possibles d'un remplissage quasi-statique du liquide dans une section carrée, étudions maintenant l'influence du rapport de forme sur les configurations possibles, ainsi que l'influence des propriétés de mouillage.

#### 7.3.1 Influence du rapport de forme

Nous nous intéressons ici à l'influence de trois sections dont les rapports de forme sont définis ainsi : (a)  $L = 2H$ , (b)  $L = H$  et (c)  $L = H/2$  : figure 7.7. Les angles de contact sont choisis en fonction des mesures expérimentales réalisées soit  $\theta_w = 55 - 75^\circ$  et  $\theta_{GDL} = 145^\circ$ .

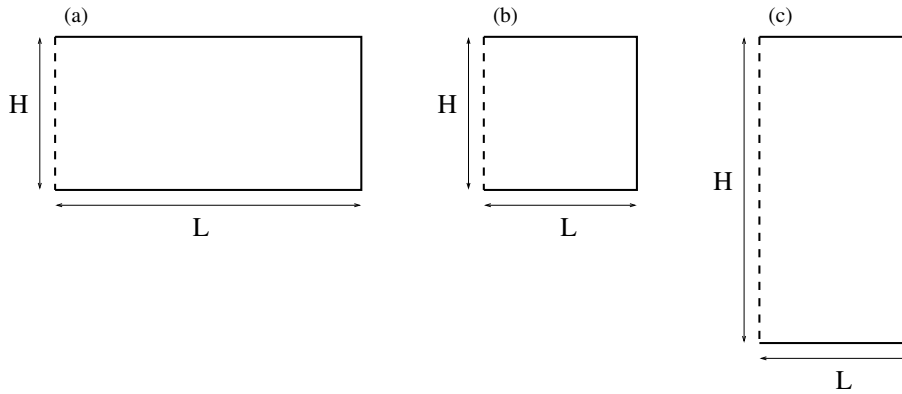


FIG. 7.7 – Sections (a), (b) et (c). Trait plein : parois de la plaque bipolaire. Trait en pointillé : GDL.

Les scénarii de remplissage pour ces sections sont présentées dans les figures (7.8) pour la section (a), (7.9) pour la section (b) et (7.10) pour la section (c).

Comme le montrent ces graphes, à partir d'un taux de remplissage seuil  $R_{L,s}$ , le liquide mouille systématiquement la GDL et diminue ainsi la surface d'échange entre le mini-canal et la zone de diffusion. Ce paramètre sera donc discriminant pour les trois rapports de forme étudiés ; nous allons le comparer pour ces trois cas.

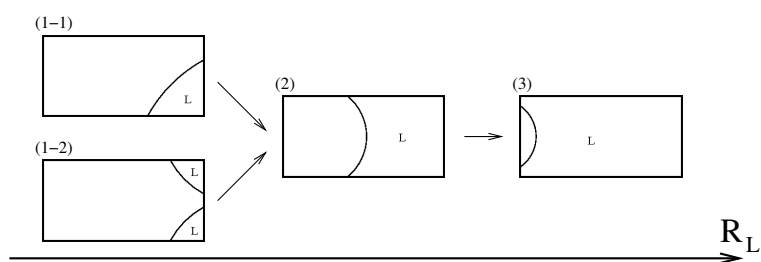


FIG. 7.8 – Scénario de remplissage pour la section (a) en fonction du taux de remplissage  $R_L$

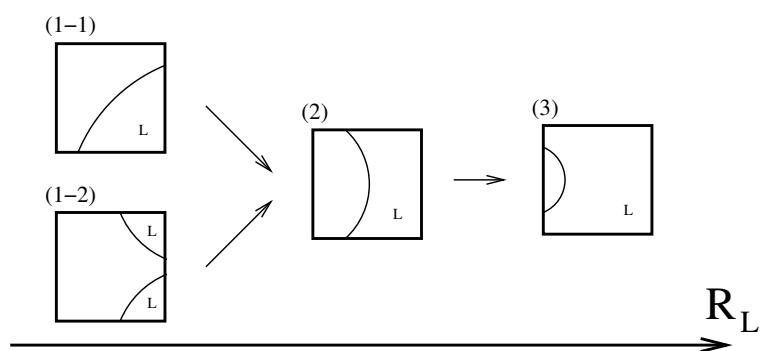


FIG. 7.9 – Scénario de remplissage pour la section (b) en fonction du taux de remplissage  $R_L$

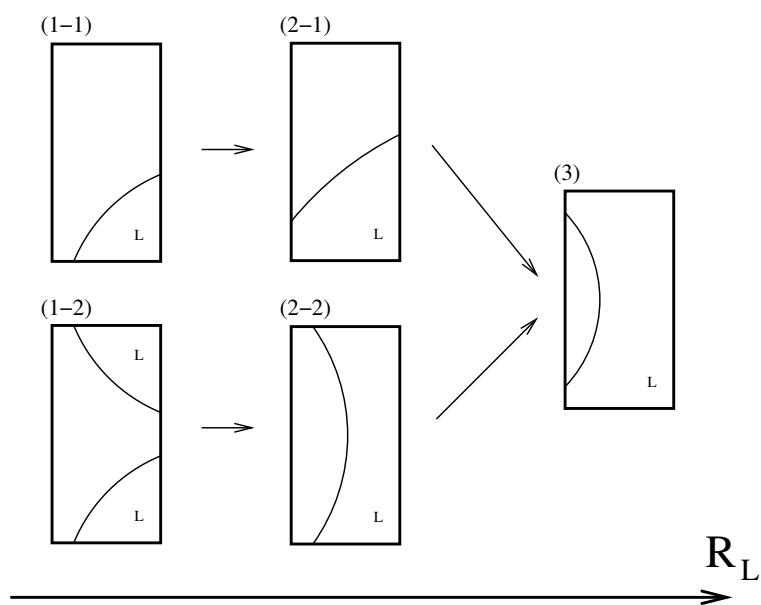


FIG. 7.10 – Scénario de remplissage pour la section (c) en fonction du taux de remplissage  $R_L$

La figure (7.11) donne l'évolution de la longueur adimensionnée de paroi mouillée  $L_w^*$  et de la longueur adimensionnée de GDL mouillée  $L_{GDL}^*$  en fonction du taux de remplissage  $R_L$ . La longueur de paroi mouillée est adimensionnée par le périmètre de la section  $L_{wet}^* = L_{wet}/(2H + 2L)$  et la longueur de GDL mouillée l'est par la hauteur de la GDL soit  $L_{GDL}^* = L_{GDL}/H$ .

A partir de ces graphes, on en déduit la valeur du taux de remplissage seuil  $R_{L,s}$  à partir duquel la GDL est mouillée, soit  $L_{GDL}^* > 0$ . On remarque que les rapports de forme (a) et (b) supportent une grande quantité de liquide sans que la GDL ne soit mouillée. Les trois configurations spatiales sont en effet identiques. Le rapport de forme (c) accepte une configuration supplémentaire où le liquide mouille la GDL pour des valeurs de  $R_L$  beaucoup plus faibles.

Le tableau 7.1 donne les valeurs de  $R_{L,s}$  pour les deux conditions initiales (1 goutte ou 2 gouttes piégées) et pour les rapports de forme.

1 goutte / 2 gouttes	$R_{L,s}$	
(a) $L = 2H$	94,6%	94,6%
(b) $L = H$	89,3%	89,3%
(c) $L = H/2$	28,4%	78,6%

TAB. 7.1 – Valeur de  $R_{L,s}$  pour  $\theta_w = 55^\circ$  et  $\theta_{GDL} = 145^\circ$ .

On obtient ainsi le rapport de forme qui va optimiser la surface d'échange entre le mini-canal et la zone de diffusion, ce qui va se traduire par un taux de remplissage seuil  $R_{L,s}$  élevé. On voit que la section (a) donne le  $R_{L,s}$  le plus grand alors que la section (c) est à éviter dans tous les cas. Les sections (a) et (b) ont une valeur de  $R_{L,s}$  proche mais la section de (a) est deux fois plus importante que (b), ce qui donne une quantité de liquide 112% plus grande pour la section (a) par rapport à (b). En conclusion, la section (a) a le rapport de forme optimal pour évacuer la plus grande quantité de liquide tout en préservant la surface d'échange entre le mini-canal et la zone de diffusion.

### 7.3.2 Influence des angles de contact

Dans l'étude précédente, nous avons identifié le rapport de forme à privilégier pour maximiser la surface d'échange entre le mini-canal et la zone de diffusion. Nous avons également vu que pour le rapport de forme (c) une configuration apparaît qui permet le mouillage de la GDL pour de faible taux de remplissage  $R_L$  : la configuration c-2-1 (figure 7.10). La configuration c-2-1 est à éviter en priorité car elle admet le mouillage de la GDL aux faibles  $R_L$ . Tout d'abord, analysons l'influence des angles de contact sur le taux de remplissage seuil  $R_{L,s}$  à partir duquel la GDL commence à être mouillée. Nous choisissons de ne faire varier essentiellement que l'angle de la plaque bipolaire  $\theta_w$  dans la gamme  $55^\circ - 85^\circ$ . En effet, cette plaque peut recevoir un traitement de surface qui fasse varier son hydrophilie, alors que la GDL est un milieu poreux qui doit rester

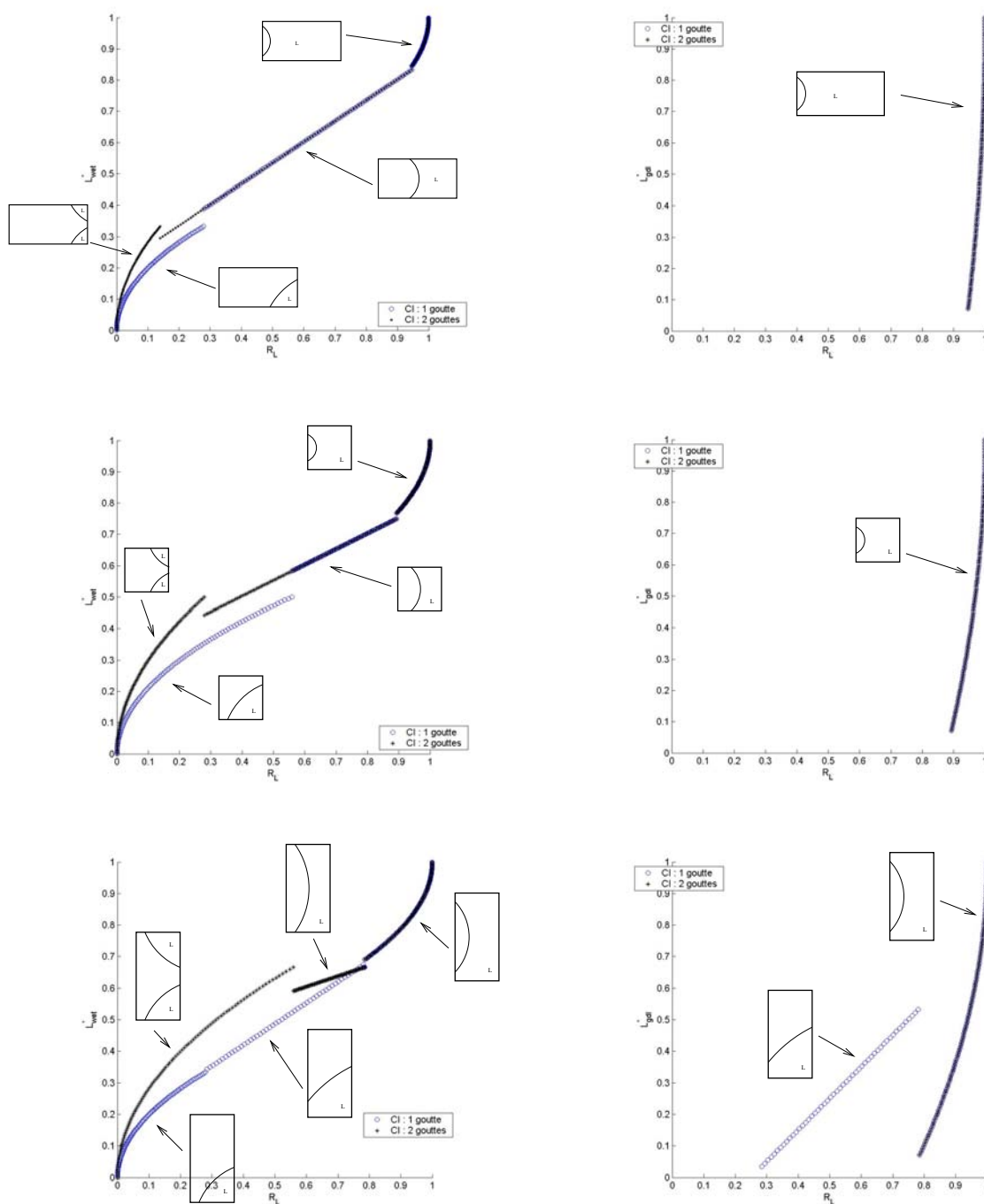


FIG. 7.11 – Evolution de  $L_{wet}^*$  (à gauche) et  $L_{gdl}^*$  (à droite) en fonction de  $R_L$  pour les sections (a) ( $L = 2H$ ) en haut, (b) ( $L = H$ ) au milieu et (c) ( $L = H/2$ ) en bas ( $\theta_w = 55^\circ$  et  $\theta_{GDL} = 145^\circ$ ).

fortement hydrophobe pour faciliter l'évacuation de l'eau formée au coeur de la pile.

Le tableau 7.2 montre l'évolution du taux de remplissage seuil  $R_{L,s}$  pour les trois rapports de forme en fonction des angles de mouillage. Les résultats sont obtenus en renouvelant l'analyse précédente pour des angles de contact différents : à partir des figures identiques à 7.11 et adaptées aux angles de contact, nous déduisons les valeurs du taux de remplissage seuil  $R_{L,s}$ .

$R_{L,s}$	(a) $(L, H) = (2mm, 1mm)$	(b) $(1mm, 1mm)$	(c) $(1mm, 2mm)$ CI : 1 - 2 gouttes
$(\theta_w, \theta_{GDL}) = (35^\circ, 140^\circ)$	93,8%	87,6%	32,1% - 75,1%
$(\theta_w, \theta_{GDL}) = (55^\circ, 140^\circ)$	94,6%	89,3%	28,4% - 78,6%
$(\theta_w, \theta_{GDL}) = (75^\circ, 140^\circ)$	97,8%	95,6%	34,5% - 91,2%
$(\theta_w, \theta_{GDL}) = (85^\circ, 160^\circ)$	99,3%	98,5%	38,1% - 97,1%

TAB. 7.2 – Valeurs du taux de remplissage seuil  $R_{L,s}$  pour les 3 rapports de forme et 4 couples d'angles de mouillage

Pour les sections (a) et (b), la variation des angles de mouillage ne change pas le fait qu'il faut un important taux de remplissage pour que le liquide mouille la GDL. Cela vient appuyer la conclusion de l'étude précédente sur l'influence du rapport de forme qui montrait que ces deux sections sont à privilégier.

Quant à la section (c), elle accepte toujours deux types de conditions initiales dont nous avons déjà parlé plus haut. Lorsque deux gouttes sont présentes,  $R_{L,s}$  est plus faible que pour les deux autres sections mais reste important. Par contre, il est toujours possible que le remplissage se fasse à partir d'une seule goutte. Dans ce cas,  $R_{L,s}$  chute du fait de la configuration c-2-2. Ici aussi, la variation des angles de mouillage ne vient pas modifier les valeurs très basses de  $R_{L,s}$ .

## 7.4 Bilan

Nous avons étudié dans ce chapitre le remplissage quasi-statique d'un canal de pile. Dans un premier temps nous avons précisé les scenarii possibles. Nous avons ensuite étudié principalement l'influence de deux paramètres : le rapport de forme  $H/L$  ainsi que la mouillabilité des paroi bipolaires. Nous avons montré que le fonctionnement de la pile (optimisation de la surface non mouillée de la GDL pour un taux de liquide donné) est optimisé si les deux conditions suivantes sont satisfaites :

$$\theta_w < 90^\circ$$

$$H < L$$

Cette étude montre également que la variation des angles de mouillage ne change pas fondamentalement les configurations permises par les rapports de forme. Ainsi la variation de  $\theta_w$  dans la gamme  $55^\circ - 85^\circ$  ne change pas le fait que les sections  $L = 2H$  et  $H = L$  sont à privilégier et que la section  $L = H/2$  est à éviter. Il faut donc en priorité porter l'effort sur l'optimisation de la forme de la section en recherchant à avoir  $L > H$  plutôt que de gagner sur une valeur de mouillage qu'il est difficile d'améliorer et vraisemblablement difficile de maintenir à cause du vieillissement de la pile. Ceci montre ainsi que la détérioration des conditions de mouillage ne sera pas dramatique pour le bon fonctionnement de la pile.

Bien sur, une telle approche ne prend pas en compte la déstabilisation de l'interface par des perturbations se développant le long du canal. L'objet du chapitre suivant est de considérer de telles situations où l'interface peut être le siège d'instabilité visqueuses ou capillaires.



## Chapitre 8

# Instabilités et transitions en mini-canaux et mini-tubes

Dans un canal de pile, à mesure que la quantité de liquide augmente, la structure de l'écoulement évolue. Il est alors envisageable d'observer plusieurs configurations d'écoulement différentes entre l'entrée et la sortie du canal. Il a été montré expérimentalement que la configuration de l'écoulement a une influence directe sur le fonctionnement de la pile ([Marchand \(1998\)](#)). Cet effet est lié au fait que la GDL peut ou non être totalement mouillée par le liquide, ce qui empêche le gaz réactif d'accéder au coeur de la pile.

Le passage d'une configuration à une autre peut s'expliquer par l'existence d'instabilités hydrodynamiques. La plus connue, l'instabilité de Kelvin-Helmoltz, apparaît dans des situations d'interfaces fortement cisillées. Cependant d'autres types d'instabilité peuvent apparaître en écoulement visqueux ou contrôlés par la capillarité. Par exemple, un écoulement stratifié peut, dans certaines conditions, être instable du fait de la différence de viscosité entre les deux fluides en présence. Une instabilité apparaît et peut entraîner une transition vers un écoulement intermittent. Une autre instabilité, d'origine capillaire, peut également exister. En effet, un écoulement annulaire présente une énergie interfaciale plus importante que celle d'un écoulement à bulles, aussi la tension de surface aura tendance à provoquer la transition de la première configuration vers la seconde.

Nous souhaitons dans ce chapitre étudier ces deux instabilités visqueuses et capillaires. L'objectif est double : d'une part de tester le potentiel de l'outil d'investigation JADIM pour reproduire le développement de ces deux instabilités bien particulières et d'autre part d'étudier si de telles instabilités peuvent être responsables de transitions de configuration en mini-canal ou mini-tube et plus précisément dans les conditions d'écoulement des canaux de la pile à combustible.



## 8.1 Instabilité visqueuse en canal 2D

### Position du problème

Nous considérons dans cette section le développement d'une instabilité induite par le contraste de viscosité entre les deux fluides en canal 2D. Afin de séparer ce type d'instabilité de celles contrôlées par la gravité et la tension de surface l'étude est menée dans un premier temps en gelant la tension de surface et la gravité soit pour

$$\sigma = 0N/m \quad \text{et} \quad g = 0m/s^2$$

La configuration initiale correspond à un écoulement de Poiseuille formé par deux nappes fluides stratifiées (figure 8.1). L'écoulement est établi à l'aide d'un gradient de pression constant. Les densités, les viscosités dynamiques et les épaisseurs initiales de chaque nappe fluide sont respectivement notées  $\rho_k$ ,  $\mu_k$  et  $h_k$ . Le fluide inférieur est noté  $k = 1$  et le fluide supérieur  $k = 2$ . [Charru & Fabre \(1994\)](#) ont montré théoriquement par une étude de stabilité linéaire qu'une instabilité induite par le saut de viscosité à l'interface peut se développer.

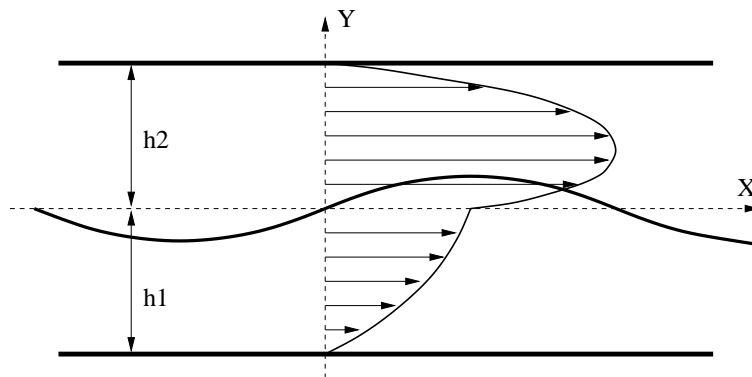


FIG. 8.1 – Définition de l'écoulement et de la perturbation initiale.

Un exemple de développement de ce type d'instabilité est reporté sur la figure 8.2. Pour cette simulation les paramètres suivant ont été choisis : la taille du domaine est définie par sa longueur  $L = 0.004m$  et sa hauteur  $H = 0,001m$  qui sont décrits par  $320 \times 80$  cellules. Une condition périodique est imposée à l'entrée et à la sortie du domaine alors que des conditions de non-glissement sont imposées sur les parois du canal. L'interface est initialement soumise à une perturbation sinusoïdale  $y = a_0 \cos(2\pi X/\lambda) + h_1$  où l'amplitude initiale vérifie  $a_0 \ll h_1$ ,  $x$  est la coordonnée horizontale et  $\lambda$  est la longueur d'onde initiale. Le rapport de densité est  $r = \rho_2/\rho_1 = 0.001$ , le rapport des viscosité est  $m = \mu_2/\mu_1 = 0.01$  et le rapport des épaisseur des nappes fluides est  $d = h_2/h_1 = 0.67$ , le nombre de Reynolds de la nappe inférieure vaut  $Re = \rho_1 U_i h_1 / \mu_1 = 2$  où  $U_i$  est la vitesse à l'interface de l'écoulement de Poiseuille initial établi imposé par un gradient de pression. D'après l'étude de [Charru & Fabre \(1994\)](#), l'écoulement est instable

dans ces conditions, ce que montre la figure 8.5. On constate même que dans cette situation, l'amplification de la perturbation est telle que la crête de l'onde générée par la déstabilisation de l'interface rejoint la paroi supérieure pour former un écoulement intermittent. Nous verrons plus loin que dans certaines situations les effets amplificateurs s'équilibrent avec les effets dissipatifs pour former un train d'onde sans que la crête ne vienne toucher la paroi supérieure. On observe alors le régime qualifié de "stratifié à vague".

L'évolution temporelle de l'amplitude de l'onde correspondant à la figure 8.2 est reportée sur la figure 8.3. Trois comportements différents sont observés. On observe durant les premiers instants (jusqu'à  $t = 0, 1(h_1 + h_2)/U_i$ ) que l'amplitude reste celle de l'amplitude de la perturbation initiale. Ensuite l'amplitude croît de manière linéaire avec le temps jusqu'à ce que l'interface touche la paroi supérieure à  $t = 0, 75(h_1 + h_2)/U_i$  correspondant au début du régime intermittent.

### Théorie linéaire

Nous souhaitons maintenant comparer nos résultats avec la théorie linéaire de *Charru & Fabre (1994)*. Dans le cas général (i.e. en présence de gravité et de tension interfaciale), l'analyse dimensionnelle montre que cet écoulement est contrôlé par 6 nombres sans dimension :

$$r = \frac{\rho_2}{\rho_1} \quad m = \frac{\mu_2}{\mu_1} \quad d = \frac{h_2}{h_1} \quad Re = \frac{\rho_1 U_i h_1}{\mu_1} \quad We = \frac{\rho_1 U_i^2 h_1}{\sigma} \quad Fr = \frac{U_i^2}{(1-r)gh_1} \quad (8.1)$$

qui sont respectivement les rapports des densités, de viscosités et d'épaisseurs, ainsi que les nombres de Reynolds, de Weber et de Froude.

Le taux de croissance normalisé par  $U_i/h_1$  est alors donnée dans la limite  $\frac{h_1}{\lambda} Re \ll 1$  par l'équation (*Charru & Fabre (1994)*) :

$$w_i = Re k^2 \left[ R_0 - S \left( \frac{1}{Fr} - \frac{k^2}{We} \right) \right] \quad (8.2)$$

où  $k = 2\pi h_1/\lambda$  est le nombre d'onde adimensionné par  $h_1$ . Le coefficient  $S$  dépend des rapports de viscosité  $m$  et d'épaisseur  $d$ ; il est toujours positif. Le coefficient  $R_0$ , qui dépend aussi de  $m$ ,  $d$  mais également du rapport de densité  $r$  peut être positif ou négatif. Concernant l'effet du nombre de Reynolds pour ce type d'instabilité, on remarque que le taux de croissance croît linéairement avec  $Re$ . Il n'existe donc pas de  $Re$  critique pour lequel l'écoulement serait stable. Même pour les écoulements à très faible  $Re$ , l'écoulement peut être instable. Les nombres de Froude et de Weber ont tous deux un effet stabilisant.

Lorsque la tension de surface et la gravité sont négligeables ou nulles (ce qui est le cadre de nos simulations), la condition d'instabilité est alors donnée par le signe de  $R_0$  dont l'expression compliquée est donnée dans l'annexe du papier de *Charru & Fabre (1994)*. Le taux de croissance se réduit alors à :

$$w_i = Re k^2 R_0 \quad (8.3)$$

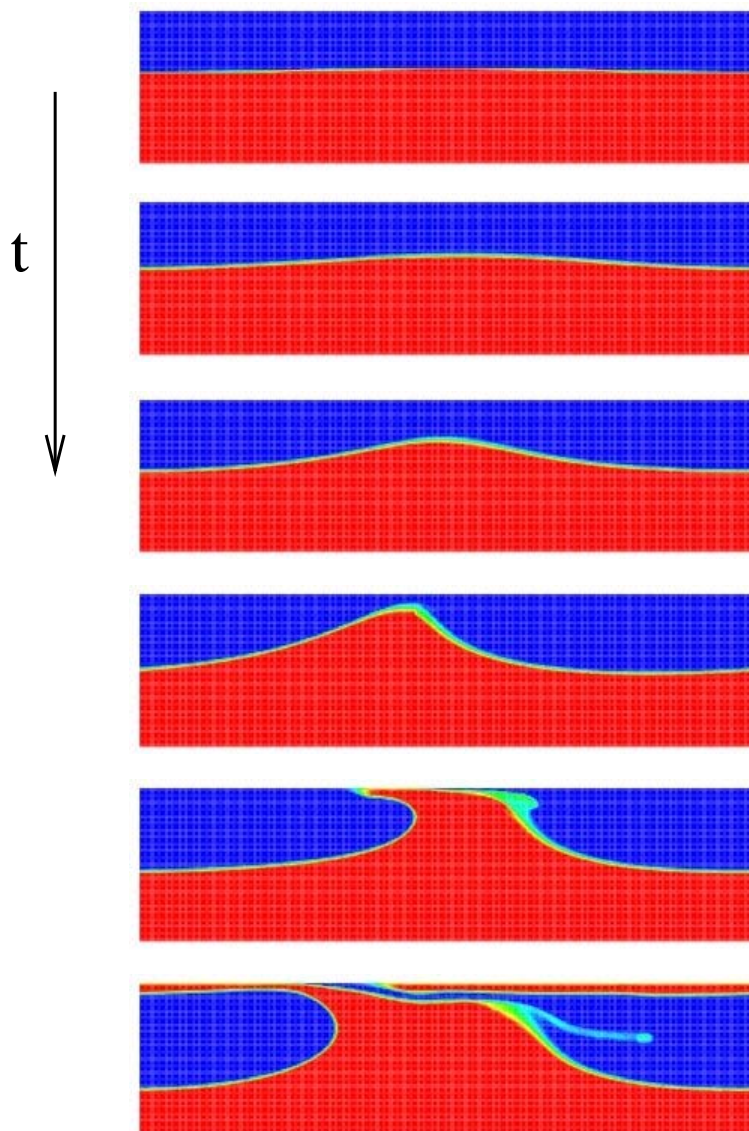


FIG. 8.2 – Exemple d'interface instable conduisant à la transition entre un écoulement stratifié lisse et un écoulement intermittent ( $r = \rho_2/\rho_1 = 0.001$ ,  $m = \mu_2/\mu_1 = 0.01$ ,  $d = h_2/h_1 = 0.67$ ,  $Re = \rho_1 U_i h_1 / \mu_1 = 2$ ). Les champs sont reportés aux instants  $t.U_i/(h_1 + h_2) = 0; 0,44; 0,67; 0,81; 1,01$

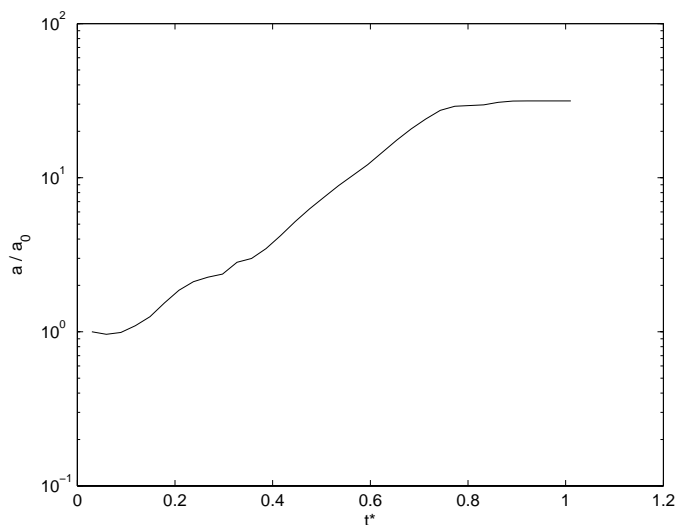


FIG. 8.3 – Evolution de l'amplitude de l'interface en fonction du temps adimensionnel  $t^* = tU_i/(h_1 + h_2)$  pour l'évolution de l'interface reportée sur la figure 8.2 ( $r = 0.001$ ,  $m = 0.01$ ,  $d = 0.67$ ,  $Re = 2$ ).

où  $R_0$  change de signe selon le rapport des viscosités  $m$  et le rapport des hauteurs  $d$ , pour  $r$  constant. L'évolution de  $R_0$  est reportée sur la figure 8.4 en fonction de  $d$  pour  $m = 0,01$  correspondant au système de fluide eau/air. On constate que  $R_0$  est toujours positif (amplification des perturbations) et compris entre les valeurs 0 et 3. On constate que les variations de  $R_0$  sont relativement bornées puisque  $0,25 < R_0 < 1,75$  pour une large plage de  $d$  définie par  $0,2 < d < 8$ .

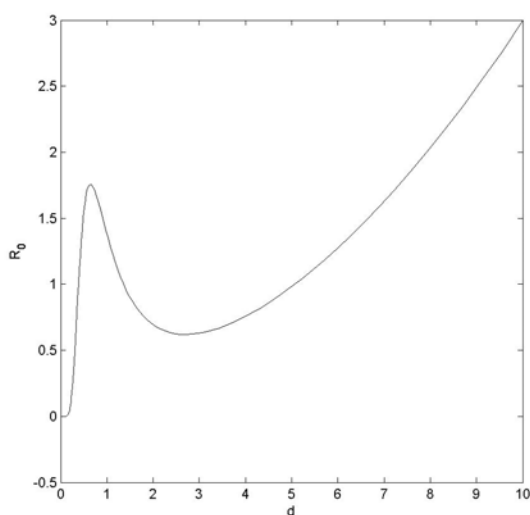


FIG. 8.4 – Evolution de  $R_0$  en fonction de  $d = h_2/h_1$  pour  $m = 0,01$  (Système eau/air).

L'évolution du taux de croissance  $w_i$  en fonction de  $\frac{h_1}{\lambda} Re$  est reportée sur la figure 8.5 pour  $r = 0.001$ ,  $m = 0.01$  et  $d = 0.67$ . Dans les simulations, la vitesse à l'interface est contrôlée par le gradient de pression imposé à l'écoulement. On constate que l'évolution du taux de croissance suit la solution de [Charru & Fabre \(1994\)](#) jusqu'à une valeur  $\frac{h_1}{\lambda} Re \sim 0, 2$ . Nos simulations semblent montrer que la solution théorique (8.3) obtenue dans la limite  $\frac{h_1}{\lambda} Re \ll 1$  est en fait valable jusqu'à  $\frac{h_1}{\lambda} Re \sim 0, 2$ . Ensuite le taux de croissance adimensionnel semble tendre vers une valeur constante  $w_i \sim 2$  indépendante de  $\frac{h_1}{\lambda} Re$ . Cet effet de saturation avec l'augmentation de  $Re$  a été montré analytiquement et par résolution numérique de l'équation d'Orr-Sommerfeld par [Albert & Charru \(2000\)](#).

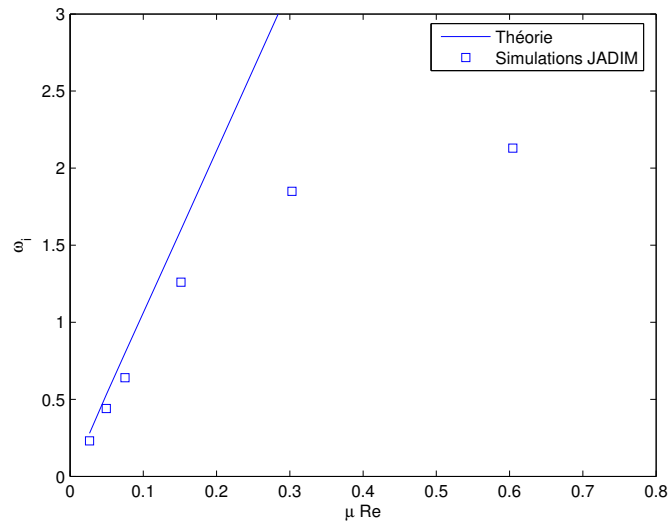


FIG. 8.5 – Evolution du taux de croissance  $w_i$  en fonction de  $\mu Re$  avec  $\mu = h_1/\lambda$  pour  $r = 0.001$ ,  $m = 0.01$ ,  $d = 0.67$ .  $\square$  Simulations numériques. — Relation (8.3)

Nous avons ensuite réalisé un certain nombre de cas dans le but de retrouver le diagramme de stabilité théorique pour  $r = 0, 001$ . La figure 8.6 compare le diagramme de stabilité théorique avec les résultats obtenus numériquement. On constate que les résultats numériques sont en très bon accord avec le diagramme de stabilité. Il a cependant été très difficile de se rapprocher des zones de transitions car le développement temporel des instabilités est très long lorsque l'on se rapproche du seuil cf. [Barthelet \*et al.\* \(1995\)](#). Typiquement, pour un temps physique de l'ordre de quelques dizaines de secondes, le temps CPU nécessaire se traduit par un calcul de l'ordre de plusieurs mois.

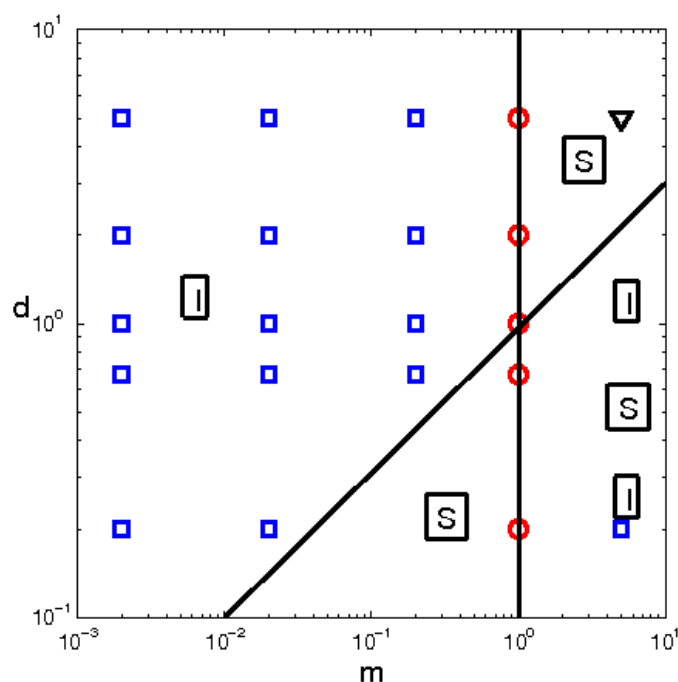


FIG. 8.6 – Diagramme de stabilité dans le plan de phase défini par  $m = \mu_2/\mu_1$  et  $d = h_2/h_1$  pour  $r = 0,001$ . Théorie [Charru & Fabre \(1994\)](#) : (I) instable et (S) stable.  $\square$  : Écoulement instable.  $\circ$  : Écoulement neutre.  $\nabla$  : Écoulement stable.

### Influence de la perturbation initiale

La relation (8.3) montre que le taux d'amplification dépend de la perturbation initiale. Expérimentalement il est très difficile de maîtriser la perturbation initiale et notamment sa longueur d'onde. Il est possible numériquement d'imposer la longueur d'onde de la perturbation initiale et nous avons observé son influence sur le régime d'écoulement obtenu après la déstabilisation de l'interface. Pour cela quatre perturbations initiales de même amplitude mais de longueurs d'onde différentes sont imposées à un écoulement de Poiseuille établi dans les conditions physiques  $r = \rho_2/\rho_1 = 0.001$ ,  $m = \mu_2/\mu_1 = 0.02$ ,  $d = h_2/h_1 = 0.67$ ,  $Re = \rho_1 U_i h_1 / \mu_1 = 30$ . Le domaine défini par  $L = 1\text{cm}$  et  $H = 1\text{mm}$  est décrit par  $400 \times 40$  cellules de calcul. Pour les longueurs d'onde initiales  $\lambda = L$ ,  $\lambda = L/2$ ,  $\lambda = L/6$  et  $\lambda = L/7$ , l'évolution de l'interface est respectivement reportée sur les figures 8.7, 8.8, 8.9 et 8.10. On constate que conformément à la théorie linéaire cette situation est instable et se déstabilise quelle que soit la longueur d'onde initiale. L'évolution de l'interface dépend ensuite de la perturbation initiale. Pour  $\lambda = L$  (figure 8.7), la crête de l'onde croît jusqu'à venir heurter la paroi supérieure pour former un écoulement intermittent qui s'établit ensuite et reste stable. Pour  $\lambda = L/2$  (figure 8.8), l'énergie communiquée au deux crêtes qui s'amplifient n'est pas suffisante pour amener l'eau à toucher la paroi supérieure. On observe alors que l'interface se stabilise et une onde de longueur d'onde  $\lambda/2$  se

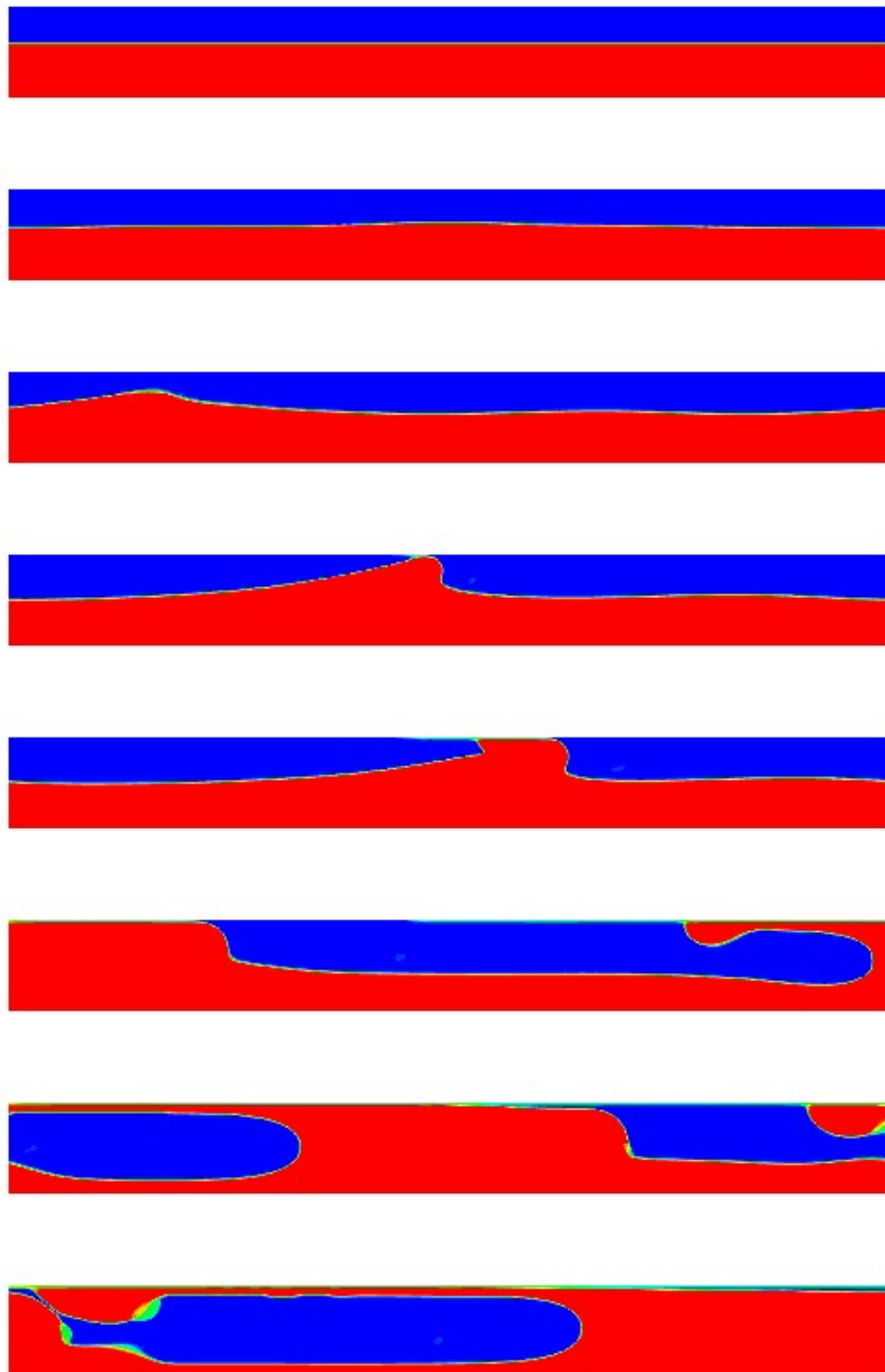


FIG. 8.7 – Evolution de l'interface pour une perturbation initiale de longueur d'onde  $\lambda = L$   
( $r = \rho_2/\rho_1 = 0.02$ ,  $m = \mu_2/\mu_1 = 0.002$ ,  $d = h_2/h_1 = 0.67$ ,  $Re = \rho_1 U_i h_1 / \mu_1 = 30$ )

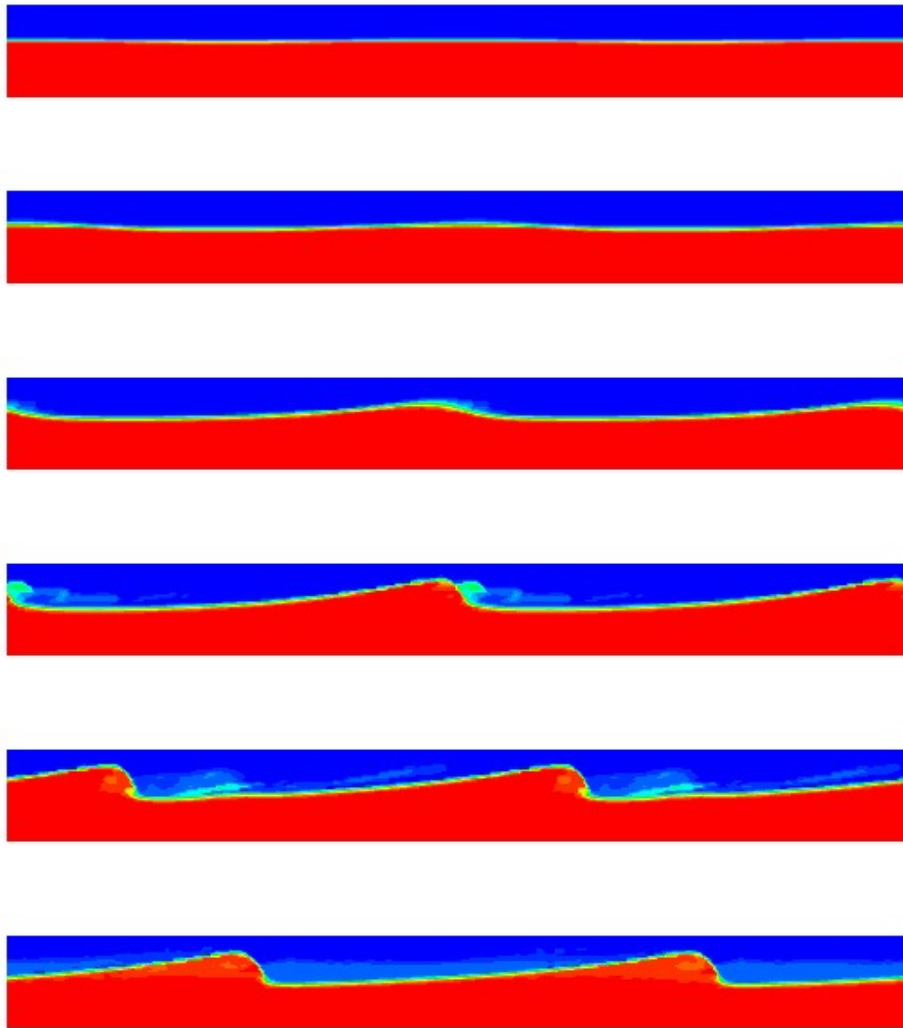


FIG. 8.8 – Evolution de l'interface pour une perturbation initiale de longueur d'onde  $\lambda = L/2$   
( $r = \rho_2/\rho_1 = 0.02$ ,  $m = \mu_2/\mu_1 = 0.002$ ,  $d = h_2/h_1 = 0.67$ ,  $Re = \rho_1 U_i h_1 / \mu_1 = 30$ )



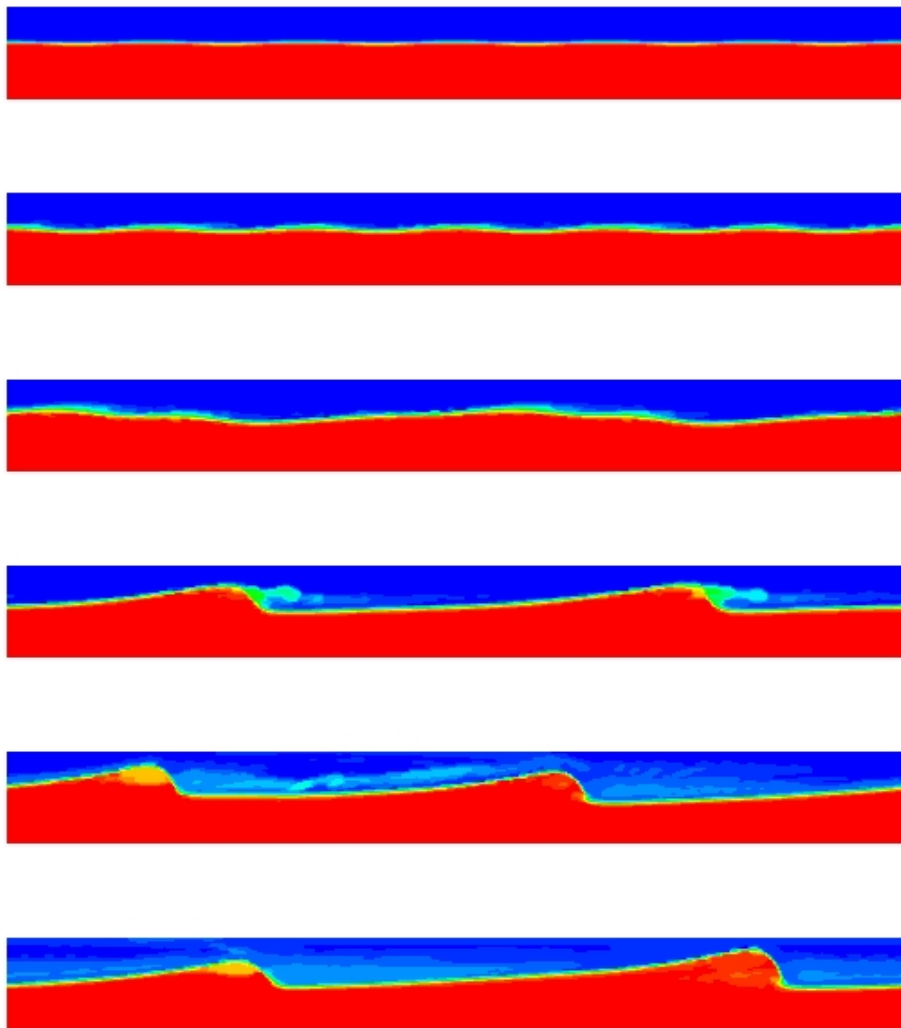


FIG. 8.9 – Evolution de l'interface pour une perturbation initiale de longueur d'onde  $\lambda = L/6$  ( $r = \rho_2/\rho_1 = 0.02$ ,  $m = \mu_2/\mu_1 = 0.002$ ,  $d = h_2/h_1 = 0.67$ ,  $Re = \rho_1 U_i h_1/\mu_1 = 30$ )

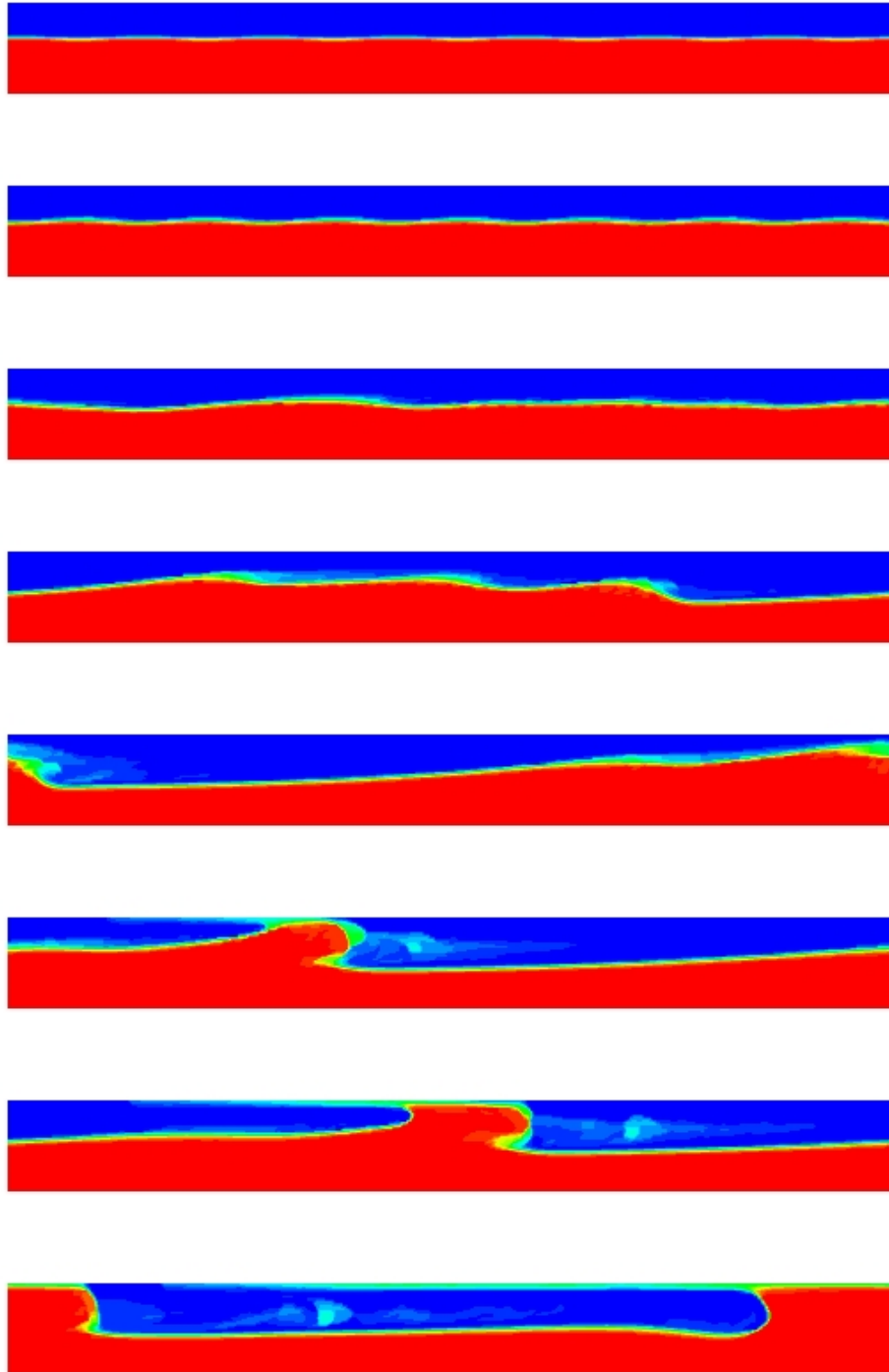


FIG. 8.10 – Evolution de l'interface pour une perturbation initiale de longueur d'onde  $\lambda = L/7$   
( $r = \rho_2/\rho_1 = 0.02$ ,  $m = \mu_2/\mu_1 = 0.002$ ,  $d = h_2/h_1 = 0.67$ ,  $Re = \rho_1 U_i h_1 / \mu_1 = 30$ )

propage. Pour  $\lambda = L/6$  (figure 8.9), on constate que l'onde s'amplifie dans un premier temps en maintenant la longueur d'onde initiale puis on observe un réarrangement de la surface qui se stabilise avec une onde de longueur d'onde  $\lambda = L/2$  qui se propage dans le domaine avec une forme très proche de celle observée sur la figure 8.8. Enfin pour  $\lambda = L/7$  (figure 8.10), l'amplification de l'onde s'effectue dans un premier puis un réarrangement de l'interface conduit à la présence d'une seule longueur d'onde dans le domaine qui conduit à la formation d'un écoulement intermittent. On constate ainsi que la structure de l'écoulement va dépendre de la perturbation initiale et de la manière dont les ondes qui se développent à l'interface se réarrangent et se développent. Une investigation des longueur d'ondes comprises entre  $\lambda = L/2$  et  $\lambda = L/6$  conduit à la sélection de la longueur d'onde  $\lambda = L/2$  et l'interface se stabilise en formant une onde qui se propage.

## Bilan

Cette étude a permis de confronter le code JADIM au le calcul de l'instabilité dite visqueuse qui se développe à l'interface d'un écoulement de Poiseuille. Les résultats numériques sont en très bon accord avec l'analyse linéaire dans le domaine de validité des hypothèses correspondantes. Ainsi, notre outil d'investigation, le code JADIM, est à même de reproduire le développement de ce type d'instabilité entre deux nappes de fluides. Nous avons mis en évidence la limite de validité de la solution théorique en fonction de  $\frac{h_1}{\lambda} Re$ .

## 8.2 Instabilité capillaire

### 8.2.1 En tube

Nous nous intéressons maintenant à un autre type d'instabilité qui a été beaucoup plus étudiée : l'instabilité capillaire ou instabilité capillaire de Rayleigh. Lord Rayleigh fut en effet le premier à traiter ce problème dans le cas non visqueux (Rayleigh (1879)) à la suite des travaux de Plateau (1873). Cette instabilité est bien connue de tous : un mince filet d'eau qui tombe d'un robinet se casse rapidement en gouttelettes. Cela montre notamment que le taux de croissance de cette instabilité est très important. L'origine de ce phénomène vient du fait que la force capillaire tend à minimiser l'aire interfaciale, et, l'aire interfaciale est moindre pour un ensemble de gouttes que pour un cylindre de liquide. En régime inertiel ( $Re \gg 1$ ), la force qui s'oppose au développement de perturbations amplifiées par la tension de surface est l'inertie du fluide : elle s'oppose au déplacement du liquide lors de la formation des gouttelettes. Aussi un temps caractéristique de cette instabilité est le temps inertio-capillaire  $\tau_c \sim (\rho_L R^3 / \sigma)^{1/2}$  où  $R$  est le rayon du cylindre de liquide. En régime visqueux ( $Re \ll 1$ ), la viscosité du liquide s'oppose au développement de perturbations. Le temps caractéristique de croissance théorique est alors le temps visco-capillaire  $\tau_c \sim \mu_L R / \sigma$ . Toutes les longueurs d'onde  $\lambda$  de perturbation ne sont pas

instables : seules le sont les perturbations telles que  $kR < 1$  où  $k = 2\pi/\lambda$  est le nombre d'onde et  $\lambda$  est la longueur d'onde. La longueur d'onde la plus instable vérifie  $kR = 1/\sqrt{2}$  (Rayleigh (1879)). Une analyse complète du phénomène peut être trouvée dans Drazin & Reid (1981).

Nous étudions ici l'instabilité capillaire de Rayleigh pour le régime annulaire dans un tube, sans que les fluides soient soumis à un gradient de pression (figure 8.11). L'instabilité de cette configuration initiale "statique" est étudiée.

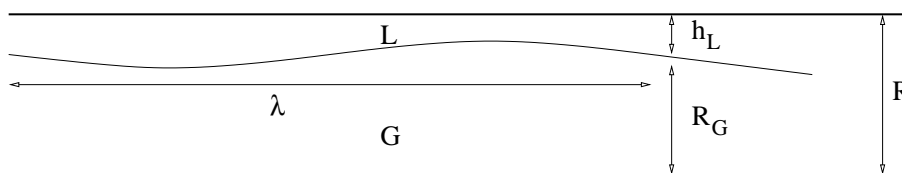


FIG. 8.11 – Définition des paramètres caractéristiques du régime annulaire perturbé en tube. (-) : axe de symétrie du tube.

En tube comme pour un jet ou un film de liquide sur une fibre (Goren (1962), Quéré (1999), Duclaux et al. (2006)), le temps caractéristique de l'instabilité capillaire dépend du nombre de Reynolds : tableau 8.1. Le nombre de Reynolds s'écrit  $Re = \rho_L u h_L / \mu_L$  où  $u$  est une vitesse caractéristique de l'évolution de la perturbation. Cependant, l'utilisation du nombre de Laplace  $La = \rho_L \sigma h_L / \mu_L^2$  permet également d'évaluer le type de régime, inertiel ou visqueux, de ce phénomène capillaire en l'absence de mouvement initial.

	$\tau_c$
$Re \gg 1$ ( $La \gg 1$ )	$\sqrt{\frac{\rho_L R_G^4}{\sigma h_L}}$
$Re \ll 1$ ( $La \ll 1$ )	$12 \frac{\mu_L R_G^4}{\sigma h_L^3}$

TAB. 8.1 – Temps caractéristique  $\tau_c$  de l'instabilité capillaire en fonction du nombre de Reynolds.

Les récentes expériences de Duclaux et al. (2006) en tube millimétrique ( $0,15 < R < 1,5 \text{ mm}$ ) montrent en régime visqueux ( $Re \ll 1$ ) que la longueur d'onde observée évolue comme  $kR_G = \sqrt{1 - 2,5E_o^2}/\sqrt{2}$  où  $E_o = R_G/l_c$  est le nombre d'Eotvos et  $l_c = \sqrt{\sigma/\rho_L g}$  est la longueur capillaire. Le temps caractéristique de croissance de l'instabilité est alors  $\tau = 1,34\tau_c$  où  $\tau_c = 12\mu_L R_G^4/\sigma h_L^3$  est le temps visco-capillaire donné par le tableau 8.1.

Compte tenu des conditions d'écoulement dans les canaux de pile, nous avons porté dans la suite notre attention sur le régime inertiel.

Considérons un tube de rayon  $R = 0,5 \text{ mm}$  et de longueur  $L = 1 \text{ cm}$ , contenant un cylindre de gaz de rayon  $R_G$ . Le liquide mouille la paroi avec un épaisseur de film  $h_L = R - R_G$ . Les

fluides sont au repos à l'instant initial. Aucun gradient de pression ni champ de vitesse ne sont imposés. L'interface est déstabilisée par une perturbation sinusoïdale de longueur d'onde  $\lambda$  et d'amplitude  $a_0$  petite devant  $h_L$  (figure 8.11).

Les propriétés physiques des fluides, eau et air à température de  $T = 20^\circ C$ , sont  $\rho_L = 1000 kg/m^3$  et  $\mu_L = 0.001 Pa.s$  pour le liquide et  $\rho_G = 1 kg/m^3$  et  $\mu_G = 0.00002 Pa.s$  pour le gaz. La gravité n'est pas considérée  $g = 0 m/s^2$  et la tension de surface est  $\sigma = 0.072 N/m$ . Le calcul est bidimensionnel axisymétrique et le domaine physique est décrit par  $300 * 30$  mailles.

La figure 8.12 présente un exemple de régime annulaire instable en tube. Ici,  $R_G = h_L = 0,25 mm$  et  $\lambda = 2,5 mm = 10 h_L$ . D'après Rayleigh (1879), le taux de croissance est maximum pour  $k R_G = 1/\sqrt{2}$ , ce qui donne  $\lambda_{max} = 2,2 mm$ . La longueur d'onde de notre perturbation est donc proche de  $\lambda_{max}$ . Le nombre de Laplace  $La = 18000$  indique que l'inertie domine la viscosité et s'oppose à la tension de surface. Le temps caractéristique inertio-capillaire est de l'ordre de  $\tau_c \sim 0,47 ms$ . L'analyse de la simulation donne un temps caractéristique  $\tau_{num} = 0,78 ms$  qui est bien du même ordre de grandeur que celui de la théorie. De plus, on peut calculer une vitesse  $u$  caractéristique de la perturbation telle que  $u = R_G/\tau_{num} \sim 32 cm/s$  ce qui donne un nombre de Reynolds  $Re \sim 80$ . Cela confirme bien que le régime est inertiel et que l'inertie du liquide est la force qui s'oppose à la tension de surface, moteur de l'instabilité.

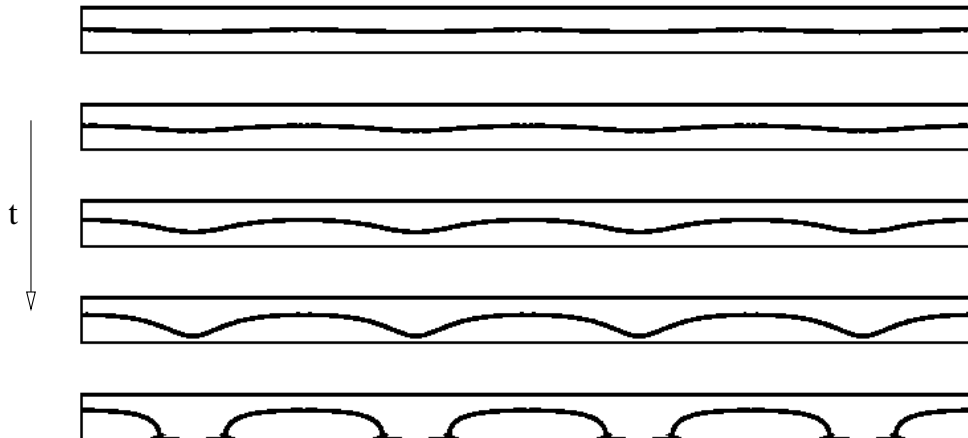


FIG. 8.12 – Exemple d'un régime annulaire statique instable en tube.  $t = 0s ; 1,4ms ; 2,24ms ; 2,63ms ; 3,00ms$ . Le liquide est au-dessus du gaz. La facette inférieure correspond à l'axe de symétrie du tube.

Comparons maintenant les résultats numériques avec la théorie linéaire développée par Goren

(1962) pour le régime inertiel. Dans ce cas, le taux de croissance s'écrit :

$$w_i = \frac{\sigma h_L}{\rho_L R_G^4} k R_G (1 - k^2 R_G^2) \frac{I_1(kR)K_1(kR_G) - K_1(kR)I_1(kR_G)}{I_1(kR)K_0(kR_G) + K_1(kR)I_0(kR_G)} \quad (8.4)$$

où  $I_n(x)$  et  $K_n(x)$  sont les fonctions de Bessel modifiées d'ordre  $n$ .

La figure 8.13 montre la variation du taux de croissance  $w_i$  en fonction du nombre d'onde adimensionné  $k R_G$  et en fonction du rayon du cylindre de gaz  $R_G$ . Dans un premier temps (figure de gauche), nous avons fait varier la longueur d'onde de la perturbation initiale  $\lambda$  pour la configuration décrite ci-dessus et le taux de croissance est reporté en fonction de  $k R_G$ . Les résultats sont comparés à la théorie linéaire de Goren (1962). Ils concordent tout à fait au résultat théorique. Nous retrouvons également la valeur de la longueur d'onde qui donne le taux de croissance maximum  $\lambda_{max} = 2\pi\sqrt{2}R_G$  correspondant à  $k R_G = 1/\sqrt{2} \simeq 0,7$  sur la figure 8.13. Nous avons ensuite fait varier le rayon du cylindre de gaz  $R_G$  en imposant la longueur d'onde de la perturbation initiale donnée par  $\lambda_{max} = 2\pi\sqrt{2}R_G$ . La figure 8.13 (partie droite) montre l'évolution du taux de croissance en fonction de  $R_G$ . L'évolution est comparée au temps caractéristique inertio-capillaire  $\tau_c$  donné dans le tableau 8.1. On constate que l'évolution du taux de croissance suit l'évolution donnée par :

$$w_i = \frac{2\pi}{\sqrt{3}\tau_c} = 2\pi\sqrt{\frac{\sigma h_L}{3\rho_L R_G^4}} \quad (8.5)$$

ce qui montre un très bon accord entre les résultats des simulations et le temps caractéristique obtenu par analyse dimensionnelle.

On constate ainsi une nette différence d'ordre de grandeur entre le taux de croissance de l'instabilité capillaire et celui de l'instabilité visqueuse étudié précédemment (cf. figure 8.5). Cette comparaison semble indiquer que l'instabilité qui va contrôler la transition est plutôt d'origine capillaire que visqueuse.

A noter que dans les simulations reportées ci-dessus, le nombre d'Etövös est nul ( $g = 0m/s^2$ ) ce qui ne nous permet pas d'envisager une correction en  $Eo$  comme mis en évidence dans les expériences de Duclaux *et al.* (2006).

Nous venons d'étudier l'instabilité capillaire de Rayleigh pour le régime annulaire dans un tube pour des fluides initialement au repos c'est à dire non soumis à un gradient de pression. Nous allons maintenant considérer un régime annulaire dans un canal de section millimétrique carrée.

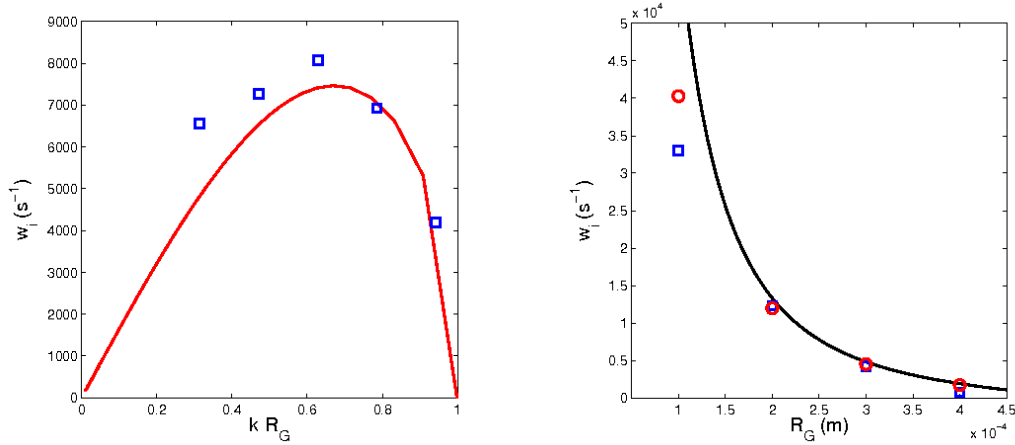


FIG. 8.13 – A gauche : taux de croissance  $w_i$  en fonction du nombre d'onde  $k R_G$ .  $\square$  : simulations. (—) Théorie linéaire de Goren (1962). A droite : taux de croissance en fonction du rayon du cylindre de gaz  $R_G$ .  $\square$  : simulations.  $\circ$  : Théorie linéaire de Goren (1962). (—) : relation (8.5).

### 8.2.2 En canal 3D

Nous nous intéressons maintenant à la stabilité d'un régime annulaire en canal. Dans le but de comparer le comportement en canal à celui observé dans le tube, nous considérons tout d'abord un régime "statique", non soumis à un gradient de pression. La transition en présence d'un écoulement sera présentée plus loin dans ce chapitre.

Une difficulté numérique apparaît dès que l'on s'intéresse à une simulation en 3D : le temps de calcul. Dans le but d'obtenir des temps de simulations "raisonnables" (1 ou 2 jours de calcul), nous utilisons un maillage  $120 \times 30 \times 30$  moins raffiné que pour l'étude précédente en tube. Nous ne simulons que le quart du canal (figure 8.14) en profitant des propriétés de symétrie du régime annulaire. Ce maillage utilise un rapport des mailles tel que  $\Delta x / \Delta = 5$ , alors qu'il était de 2 pour le tube.

Nous considérons un canal de section carrée  $H = 1 \text{ mm}$  et de longueur  $L = 1 \text{ cm}$ . Un cylindre de gaz, de rayon  $R_G$ , est placé au centre du canal. Le liquide mouille les parois avec une épaisseur  $h_L$  qui varie suivant que l'on se rapproche ou s'éloigne d'une arête du canal. L'interface est perturbé par une onde sinusoïdale de longueur d'onde  $\lambda$  et d'amplitude  $a_0$ .

Les propriétés physiques des fluides, eau et air à température de  $T = 20^\circ \text{C}$ , sont  $\rho_L = 1000 \text{ kg/m}^3$  et  $\mu_L = 0.001 \text{ Pa}\cdot\text{s}$  pour le liquide et  $\rho_G = 1 \text{ kg/m}^3$  et  $\mu_G = 0.00002 \text{ Pa}\cdot\text{s}$  pour le gaz. La gravité n'est pas considérée  $g = 0 \text{ m/s}^2$  et la tension de surface est  $\sigma = 0.072 \text{ N/m}$ .

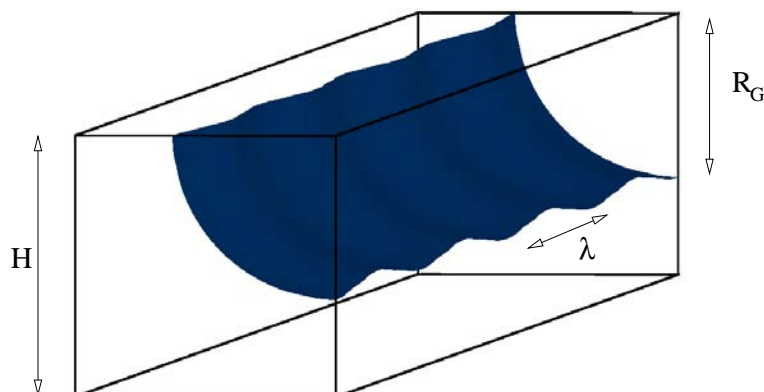


FIG. 8.14 – Régime annulaire perturbé en canal. Le quart inférieur gauche du canal simulé est ici présenté. Les conditions de symétrie sont imposées aux frontières "supérieure" et "droite".

La figure 8.15 présente un exemple de développement d'instabilité capillaire en canal. Dans ce cas,  $R_G = 0,3mm$ . La longueur d'onde initiale choisie est la valeur la plus proche de  $2\pi\sqrt{2}R_G$ , ici  $\lambda = 2,5mm$ . On mesure un temps d'instabilité de  $\tau_{num} = 1,1ms$ . Pour comparer avec la théorie, nous avons besoin d'une valeur constante de  $h_L$  car le film de liquide a une épaisseur qui varie de  $h_L = 0,2mm$  à  $0,3mm$ . Nous choisissons de prendre pour l'épaisseur caractéristique de film  $h_L$  l'épaisseur qu'aurait le film dans un tube de section équivalente à l'aire du canal :  $R_{eq} = H/\sqrt{\pi}$ . Ainsi nous définissons

$$h_L = \frac{H}{\sqrt{\pi}} - R_G$$

Pour l'exemple reporté sur la figure 8.15,  $h_L = 0,26mm$ . Le temps caractéristique de l'instabilité prédit par la relation (8.5) donne  $\tau = \sqrt{3\rho_L R_G^4 / \sigma h_L} = 1,1ms$  et la théorie linéaire de Goren (1962) donne  $\tau = 1,2ms$  (relation 8.5). Ici également, la simulation retrouve un taux de croissance dont la valeur est correctement prédite par l'analyse dimensionnelle et par la théorie linéaire. Notons que la définition adoptée pour  $h_L$  ne change pas sensiblement la valeur du taux de croissance ainsi calculé.

Comme pour le tube, nous étudions l'influence du nombre d'onde  $k$  et de la taille du tube central de gaz  $R_G$  sur le taux de croissance  $w_i$ . Dans un premier temps, nous faisons varier la longueur d'onde de la perturbation initiale pour une valeur de  $R_G$  fixe. La figure 8.16 (gauche) présente cette évolution pour  $R_G = 0,25mm$  en fonction de  $kR_G$ . Les simulations sont comparées à la théorie de Goren (1962). Ici, l'accord est également tout à fait acceptable malgré la différence de géométrie et l'utilisation d'un maillage moins raffiné que pour le tube. Puis nous faisons varier  $R_G$  en perturbant l'interface avec une longueur d'onde proche de  $\lambda_{max}$ . Ici, les résultats sont comparés à la fois à Goren (1962) et à  $w_i = 3/\tau_c$ . De la même manière qu'en tube, les résultats sont en très bon accord sauf pour  $R_G = 0,1mm$  où un écart plus important est observé.



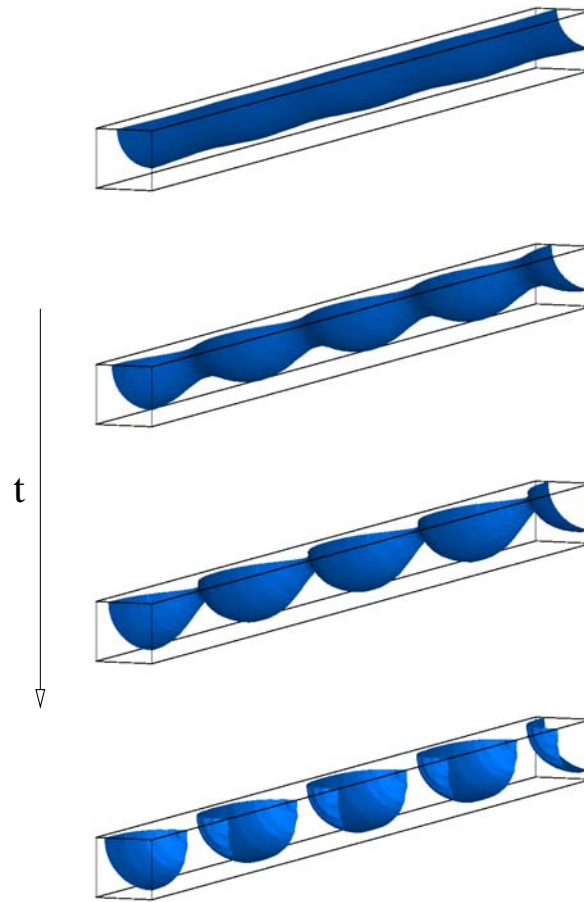


FIG. 8.15 – Exemple d'un régime annulaire statique instable en canal.  $t = 0s$ ;  $3,1ms$ ;  $3,8ms$ ;  $4,4ms$ . Seul le quart inférieur droit est représenté : le liquide mouille les parois "gauche" et "inférieure". Les facettes "haute" et "droite" correspondent des symétries. L'interface est représentée par l'isocontour  $C = 0,5$ .

Dans cette étude de la stabilité d'un régime annulaire en canal, nous remarquons que les résultats sont très proches de ceux obtenus en tube. Une raison peut être avancée : la différence entre ces deux configurations réside dans une plus grande surface de paroi mouillée pour le canal que pour le tube. On peut donc d'attendre à ce que la dissipation visqueuse intervienne davantage et réduise le taux de croissance. Or, la valeur du nombre de Laplace  $La = 18000$  indique que la viscosité n'est pas dominante vis à vis de l'inertie. Elle joue un rôle marginal, ce que confirme la concordance entre les simulations et la théorie linéaire en régime inertiel. Aussi, l'augmentation (peu importante) de surface mouillée de paroi ne peut modifier substantiellement la compétition capillarité/inertie à l'interface. Le taux de croissance des perturbations qui s'y développent reste donc très proche en canal et en tube.

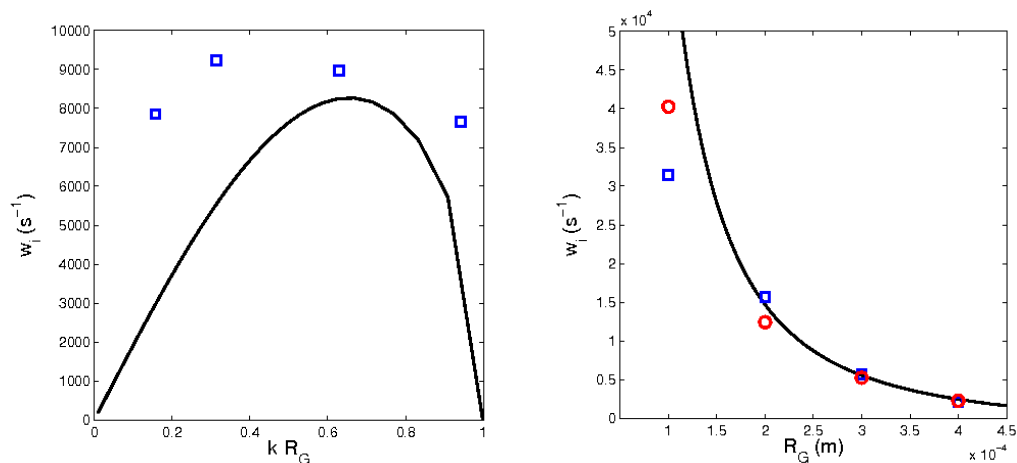


FIG. 8.16 – A gauche : taux de croissance  $w_i$  en fonction du nombre d'onde  $k R_G$ .  $\square$  : simulations. (—) Théorie linéaire de Goren (1962). A droite : taux de croissance en fonction du rayon du cylindre de gaz  $R_G$ .  $\square$  : simulations.  $\circ$  : Théorie linéaire de Goren (1962). (—) : relation (8.5).

### 8.3 Ecoulement à phases séparées stable en tube et canal

Avant d'étudier le développement d'instabilités au sein d'un canal en présence d'un écoulement de Poiseuille nous considérons différentes configurations, géométriquement possibles, d'écoulement à phases séparées. La figure 8.17 donne trois exemples de configurations qui sont étudiées par la suite. Il s'agit de :

- *EPSm* : Ecoulement à phases séparées qui mouille l'ensemble des parois (figure 8.17-Gauche). Il s'agit de la configuration étudiée précédemment d'un écoulement annulaire de gaz.
- *EPSnmC* : Ecoulement à phases séparées qui ne mouille que les arêtes du canal (figure 8.17-Centre).
- *EPSnmS* : Ecoulement à phases séparées qui est stratifié (figure 8.17-Droite). Il mouille totalement une paroi, partiellement deux autres et pas du tout la troisième.

Nous souhaitons caractériser l'écoulement et notamment la relation entre le rapport des vitesses superficielles  $j = J_G/J_L$  en fonction du taux de remplissage en liquide  $R_L$  défini comme le rapport entre  $A_L = \pi(R^2 - R_G^2)$  l'aire de la section occupée par le liquide et  $A = \pi R^2$  l'aire de la section totale du canal.

Pour un écoulement en tube, la solution de Poiseuille peut être obtenue pour exprimer la relation liant  $j$  à  $R_L$ . En effet, le champ de vitesse dans chaque phase est solution de l'équation de Poisson suivante :

$$\Delta U_k = \frac{1}{\mu_k} \frac{dP}{dx} \quad (8.6)$$

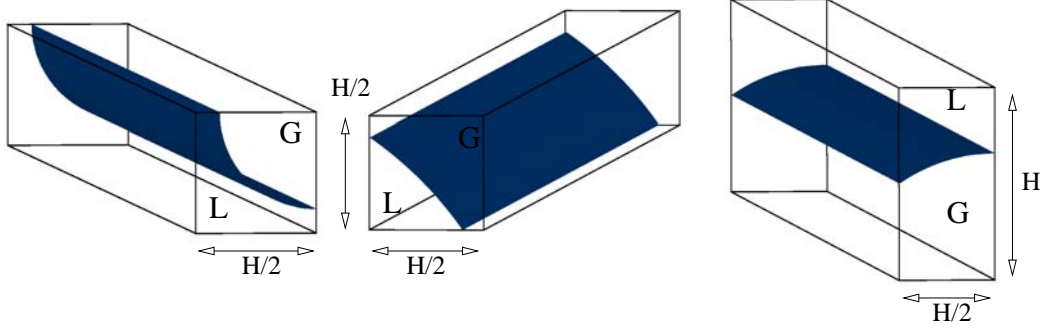


FIG. 8.17 – Configurations à phases séparées en canal étudiées. A gauche (le quart inférieur gauche du canal est représenté) :  $EPSm$  Ecoulement à phases séparées qui mouille les parois. Au milieu (le quart inférieur gauche du canal est représenté) :  $EPSnmC$  Ecoulement qui ne mouille que les arêtes du canal. A droite (la moitié gauche du canal est représentée) :  $EPSnmS$  Ecoulement pour lequel une paroi est entièrement mouillée et les deux parois adjacentes le sont en partie.

La condition d'adhérence aux parois et le raccordement des vitesses et des contraintes tangentielles à l'interface permet de calculer le profil de vitesse  $u_k(r)$  dans chaque phase :

$$u_L(r) = U_i \frac{R^2 - r^2}{R^2 - R_G^2} \quad (8.7)$$

$$u_G(r) = U_i \left( 1 + m \frac{R_G^2 - r^2}{R^2 - R_G^2} \right) \quad (8.8)$$

où  $r$  est la coordonnée radiale prise depuis l'axe du tube,  $m = \mu_L/\mu_G$  est le rapport des viscosités et la vitesse à l'interface s'écrit :

$$U_i = -\frac{1}{4\mu_L} \frac{dP}{dx} (R^2 - R_G^2)$$

Par intégration sur les sections respectives de gaz ( $0 \leq r \leq R_G$ ) et de liquide ( $R_G \leq r \leq R$ ), il est possible d'en déduire les vitesses débitantes  $U_L$  et  $U_G$  :

$$U_L = \frac{1}{2} U_i \frac{R^2 - R_G^2}{R^2} \quad (8.9)$$

$$U_G = U_i \left( 1 + \frac{1}{2} m \frac{R_G^2}{R^2 - R_G^2} \right) \frac{R_G^2}{R^2} \quad (8.10)$$

d'où l'on tire les vitesses superficielles  $j_k A = U_k A_k$  :

$$J_L = \frac{1}{2} U_i \quad (8.11)$$

$$J_G = U_i \left( 1 + \frac{1}{2} m \frac{R_G^2}{R^2 - R_G^2} \right) \quad (8.12)$$

Finalement la relation reliant  $j = J_G/J_L$  au taux de remplissage en liquide  $R_L$  s'écrit en écoulement annulaire dans un tube :

$$j = \frac{J_G}{J_L} = \frac{1 - R_L}{R_L} \left( 2 + m \frac{1 - R_L}{R_L} \right) \quad (8.13)$$

Nous souhaitons caractériser cette relation pour un écoulement en canal pour les trois configurations  $EPSm$ ,  $EPSnmC$  et  $EPSnmS$  décrites par la figure 8.17. Pour cela, nous simulons l'écoulement diphasique pour ces trois configurations dans un canal de section carrée  $H = 1mm$  et de longueur  $L = 1cm$ . L'eau et l'air sont les fluides utilisés à la température  $T = 20^\circ C$ . Les propriétés physiques des fluides sont par conséquent  $\rho_L = 1000kg/m^3$  et  $\mu_L = 0.001Pa.s$  pour le liquide et  $\rho_G = 1kg/m^3$  et  $\mu_G = 0.00002Pa.s$  pour le gaz. La gravité n'est pas considérée ( $g = 0m/s^2$ ) ni la tension de surface ( $\sigma = 0N/m$ ), de manière à obtenir les vitesses superficielles  $J_L$  et  $J_G$  sans que l'instabilité capillaire n'affecte l'écoulement. La quantité de liquide  $R_L$  varie de manière à décrire, pour chaque configuration, l'ensemble de la gamme  $R_L$  possible. Pour les configurations  $EPSnmC$  et  $EPSnmS$  qui présentent un démouillage d'une partie des parois, l'interface forme un angle de contact de  $\theta = 55^\circ$ .

Notons que, comme pour le calcul précédent en canal, le domaine de calcul est réduit de manière à profiter de la symétrie des configurations. Cela permet de diminuer le temps de calcul d'une simulation. Aussi nous ne simulons que le quart du domaine physique pour les configurations  $EPSm$  et  $EPSnmC$ , et la moitié du domaine pour  $EPSnmS$ . Il n'est par conséquent pas possible de reproduire le développement d'instabilités le long de la direction transverse à l'écoulement.

La figure (8.18) présente l'évolution de  $j = J_G/J_L$  en fonction du taux de remplissage en liquide  $R_L$ . La relation pour un écoulement annulaire en tube est également reportée.

On constate que globalement les quatre évolutions sont très semblables. Ainsi, l'intérêt de cette représentation est que pour une valeur de  $R_L$  et pour une configuration donnée, il n'existe qu'une seule valeur de  $j$ . En effet, comme le montre l'expression des champs de vitesse (8.7), augmenter le gradient de pression revient à augmenter dans la même proportion les vitesses superficielles si bien que leur rapport reste constant.

La comparaison des résultats numériques en tube avec la relation théorique obtenue dans le cas du tube montre que l'évolution de  $j$  en fonction de  $R_L$  dans le cas d'un écoulement annulaire en canal ( $EPSm$ ) suit tout à fait celle du tube. Pour les régimes  $EPSnmC$  et  $EPSnmS$ , le rapport  $j$  est légèrement inférieur à celui du tube.

Notons également que par simple argument géométrique chaque configuration présente un taux de remplissage  $R_L$  limité. Pour l'écoulement annulaire en canal  $EPSm$ ,  $R_L \in [0.21; 1]$ . En effet cette configuration ne peut apparaître que si le cylindre de gaz a un rayon inférieur à  $H/2$ , ce qui correspond à  $R_{L,min} = 0,21$ . On peut imaginer qu'au voisinage de ce taux de remplissage limite, le film de liquide présente une épaisseur très instable. Une perturbation peut alors facilement provoquer le démouillage de ce film et le liquide migrera pour se localiser préférentiellement dans les arêtes : c'est la transition vers le régime  $EPSnmC$ .

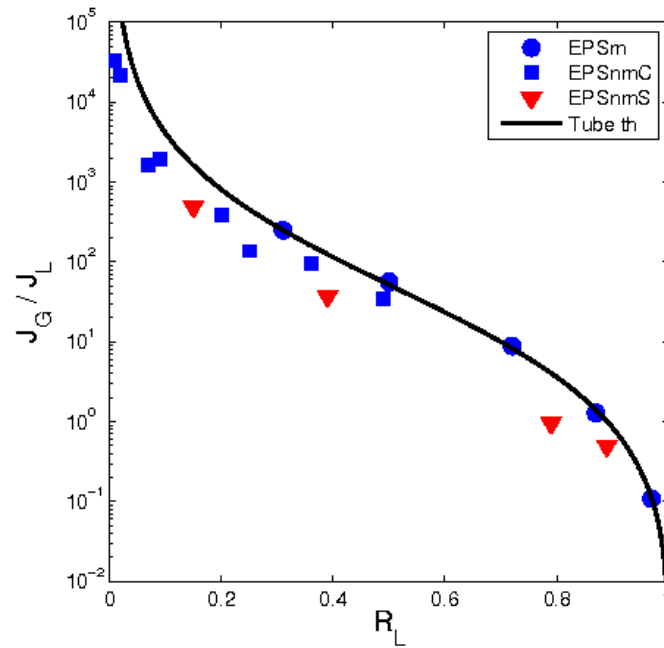


FIG. 8.18 – Evolution du rapport des vitesses superficielles  $j = J_G/J_L$  en fonction du le taux de remplissage de liquide  $R_L$ . — relation (8.13).

Le régime *EPSnmC*, qui ne mouille que les arêtes du canal, présente également un taux de remplissage maximal. Ainsi  $R_L \in [0; 0.56]$ . En effet, dans ce cas où le liquide est piégé dans chaque arête et forme un angle  $\theta = 55^\circ$  avec la paroi, le taux de remplissage maximal correspond à une longueur d'étalement égal à  $H/2$ , ce qui donne la valeur limite  $R_L = 0,56$ .

Enfin, le régime *EPSnmS* stratifié a une gamme de  $R_L$  plus large. Lorsque le liquide mouille les parois à  $\theta = 55^\circ$ ,  $R_L$  est limité théoriquement entre 0,05 et 0,89. Le graphe 8.18 donne la valeur de  $j$  pour  $R_L$  variant de 0,1 à 0,85.

Ainsi, pour une large gamme de  $R_L$ , les trois configurations sont géométriquement possibles. Expérimentalement, les conditions d'injection du liquide peuvent être décisives et imposer une configuration qui pourra ou non se déstabiliser par la suite.

## 8.4 Transitions capillaires

### 8.4.1 En canal 3D

Intéressons-nous maintenant à la stabilité des écoulements décrits ci-dessus (figure 8.17). Rappelons que le mouvement est imposé par un gradient de pression.

Les études d'écoulements diphasiques sont généralement résumées par un graphe de configu-

ration d'écoulement donnant le type de régime en fonction des vitesses superficielles du liquide  $J_L$  et du gaz  $J_G$ . Ainsi, pour un canal de taille millimétrique et pour de l'eau et de l'azote, [Morgante & Fabre \(2005\)](#) présentent une carte de configuration pour des vitesses superficielles dans la gamme de celles d'une pile à combustible.  $J_G$  varie de 1 à 1000 cm/s et  $J_L$  de 0,1 à 100 mm/s. Deux configurations sont observées : un écoulement intermittent caractérisé par la présence de poches de gaz séparées par des bouchons de liquide, et un écoulement à phases séparées caractérisé par la continuité de l'interface entre le gaz et le liquide.

### Carte de configuration

Pour étudier la stabilité des écoulements à phases séparées, la démarche du numéricien est différente de celle de l'expérimentateur. La différence concerne l'organisation initiale des deux phases qui comme nous l'avons commenté dans la section précédente n'est pas décorrélée du taux de remplissage du liquide  $R_L$  dans le canal. En effet, lors d'une expérience, la valeur de  $R_L$  est délicate à contrôler et dépend des conditions d'injection des deux phases alors qu'il s'agit d'une condition initiale pour le numéricien. Nous avons dans la section précédente mis en évidence la relation entre le rapport des vitesses superficielles  $j = J_G/J_L$  et le taux de remplissage de liquide  $R_L$  en l'absence de perturbation de l'interface pour les différents régimes à phases séparées identifiés (figure 8.17).

Nous souhaitons dans un premier temps reporter cette évolution et les configurations initiales correspondantes sur le diagramme de configuration ( $J_G$ ,  $J_L$ ) obtenu par [Fabre \(2006\)](#) (figure 8.19). Notons que les observations expérimentales référencées comme "écoulement à phases séparées" peuvent être des écoulements annulaires mais aussi des écoulements où le liquide est piégé dans une ou plusieurs arêtes. Les trois configurations numériques "non perturbées" considérées sont l'écoulement annulaire  $EPSm$ , l'écoulement de liquide dans les arêtes  $EPSnmC$  et l'écoulement stratifié  $EPSnmS$ .

Ainsi, la tension de surface n'est toujours pas prise en compte de manière à ne pas déstabiliser l'interface. Les écoulements sont obtenus en imposant un gradient de pression  $dP/dx = -5 \text{ mbar/m}$  donné. Compte tenu de la relation (8.6), les valeurs de  $J_L$  et  $J_G$  varient dans les mêmes proportions lorsque le gradient de pression varie. Ainsi toutes les évolutions possibles peuvent être déduites de celles tracées sur la figure 8.19 par translation suivant la bissectrice. Un trait continu est tracé sur le graphe pour décrire cette translation pour le point correspondant au régime annulaire  $EPSm$  ayant le taux de remplissage minimal  $R_L \sim 0,3$ . Cette ligne montre que la configuration annulaire ne peut géométriquement exister en dessous de cette ligne. Elle ne peut par conséquent exister qu'au dessus de cette ligne. On constate en fait que cette ligne se superpose en fait avec la ligne de transition expérimentale entre le régime intermittent (au dessus) et le régime à phases séparées (au dessous). Cette comparaison montre que dans ces conditions d'écoulement le régime annulaire ne peut exister et se déstabilise en écoulement inter-

mittent. Par le même raisonnement on constate que les configurations  $EPSnmC$ , où le liquide est localisé dans les arêtes, et  $EPSnmC$  où les phases sont stratifiées peuvent exister d'un point de vue purement géométrique dans le domaine des écoulements à phase séparées.

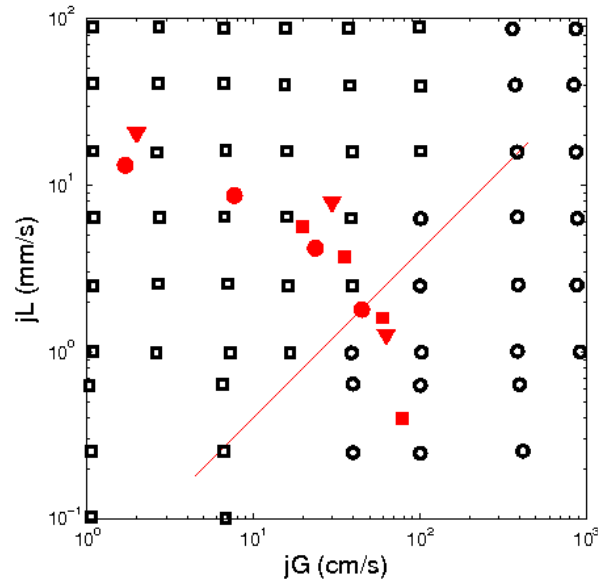


FIG. 8.19 – Carte de configuration d'écoulement en fonction de  $(J_G, J_L)$ . Expérience Fabre (2006) : □ écoulement intermittent et ○ écoulement à phases séparées. Simulations : ● écoulement  $EPSm$ , ■ écoulement  $EPSnmC$  et ▼ écoulement  $EPSnmS$ . (-) Variation de  $dP/dx$ .

### Simulations d'écoulements perturbés : exemples de comportement

Les configurations initiales présentées ci-dessus sont maintenant perturbées. Nous donnons ici quelques illustrations des comportements possibles d'un écoulement initialement à phases séparées et qui est perturbé. Considérons l'écoulement annulaire  $EPSm$  qui se déstabilise pour évoluer vers un écoulement intermittent. Suivant le rayon du cylindre de gaz  $R_G$  et la longueur d'onde de la perturbation initiale, les poches de gaz peuvent ou non venir démouiller les parois. La figure 8.20 illustre ces deux possibilités. Dans le cas où  $R_L = 0,7$  et  $\lambda = L/6$  (figure de gauche), le volume de gaz initial  $\pi R_G^2 L$  doit être conservé dans les trois bulles qui se forment, ce qui donne des bulles de diamètre supérieur à la hauteur du canal. Les bulles provoquent donc un démouillage du liquide à la paroi. Le régime où  $R_L = 0,9$  et  $\lambda = L/3$  (figure de droite) forme une série de poches qui restent de diamètre inférieur à la hauteur du canal : il n'y a pas de démouillage.

Concernant les écoulements  $EPSnmC$  (le liquide est alors localisé dans les arêtes), ils restent stables au sens où il n'y a pas de transition vers le régime intermittent. Cependant, l'instabilité capillaire agit également de manière à rompre l'interface pour former des gouttelettes qui restent

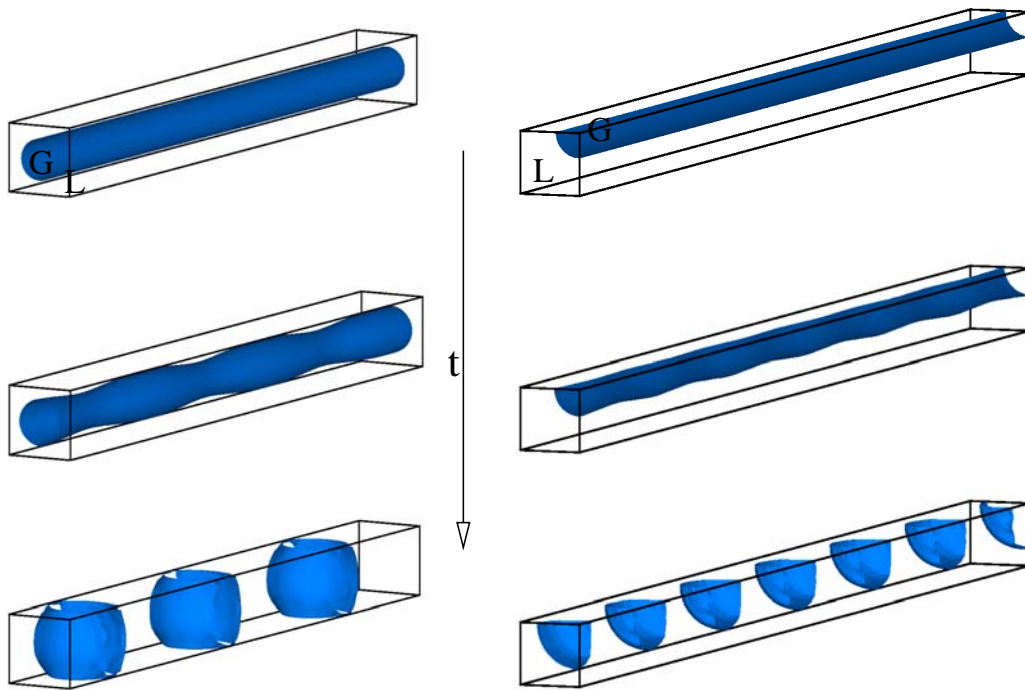


FIG. 8.20 – Exemples d’instabilités capillaires en canal. A gauche : Transition d’un écoulement annulaire  $EPSm$  ( $R_L = 0,7$ ,  $J_G = 45\text{cm/s}$ ,  $J_L = 110\text{m/s}$ ) vers un écoulement intermittent où les poches de gaz démouillent les parois. A droite : Transition d’un écoulement annulaire  $EPSm$  ( $R_L = 0,9$ ,  $J_L = 130\text{m/s}$ ,  $J_G = 15\text{cm/s}$ ) avec  $R_L$  vers un écoulement intermittent où les poches de gaz ne démouillent pas les parois.  $t = 48\text{ms}$ ,  $50\text{ms}$ ,  $52\text{ms}$ .

piégées dans l’arête. Ce phénomène est d’autant plus sensible que le rayon du liquide  $R_L$  est faible. C’est ce qu’illustre la figure 8.21. Trois écoulements sont représentés qui varient en fonction de la quantité de liquide  $R_L$  et du gradient de pression. Pour le régime où la quantité de liquide est moindre, le cylindre se casse et des gouttelettes se forment. Ce n’est pas le cas du régime où  $R_L = 0,2$ . Cependant, il présente des perturbations dont le taux d’amortissement est faible, alors que pour  $R_L = 0,4$ , le taux d’amortissement est plus important et les perturbations à l’interface disparaissent rapidement.

### Simulations d’écoulements perturbés : carte de configuration

Nous nous intéressons ici numériquement à l’étude de la stabilité des configurations initiales à phases séparées présentées ci-dessus ( $EPSm$ ,  $EPSnmC$  et  $EPSnmS$ ). Rappelons que l’écoulement est soumis à un gradient de pression. Nous considérons toujours comme fluides l’eau et l’air à  $T = 20^\circ\text{C}$  en canal de hauteur  $H = 1\text{mm}$  et de longueur  $L = 1\text{cm}$ . Les maillages utilisés ne décrivent qu’une partie du domaine physique en profitant des symétries existantes. Pour un



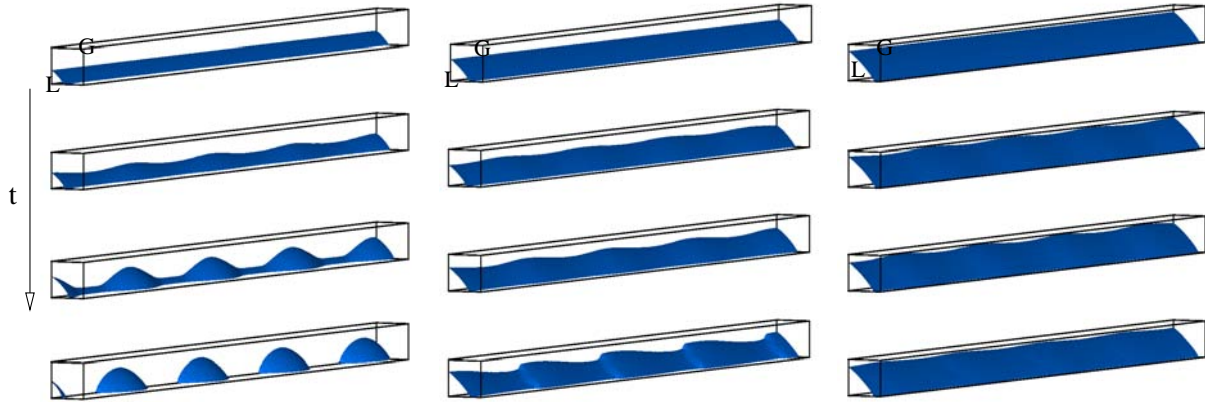


FIG. 8.21 – Exemples d’écoulements en arête  $EPSnmC$  en canal pour une perturbation initiale  $\lambda = L/4$ . A gauche : écoulement  $EPSnmC$  ( $R_L = 0,15$ ,  $J_G = 72\text{cm/s}$ ,  $J_L = 3\text{m/s}$ ) et transition vers un régime à gouttes. Au milieu : écoulement  $EPSnmC$  ( $R_L = 2$ ,  $J_G = 600\text{cm/s}$ ,  $J_L = 20\text{mm/s}$ ). A droite : écoulement  $EPSnmC$  ( $R_L = 0,4$ ,  $J_G = 400\text{cm/s}$ ,  $J_G = 60\text{mm/s}$ ).

écoulement à deux symétries, le quart du domaine physique  $1\text{mm} * 1\text{mm} * 1\text{cm}$  est simulé par  $30 * 30 * 120$  mailles, 30 mailles décrivant  $H/2$ . Les simulations sont faites en deux temps : les phases sont initialisées et soumises à un gradient de pression mais sans considérer la tension de surface. Cela permet au champ de vitesse de s’établir. Ensuite, la tension de surface est prise en compte et l’interface perturbée par une onde sinusoïdale de longueur  $\lambda$ . La longueur d’onde dépend du rayon du cylindre et est la plus proche de  $2\pi\sqrt{2}R_G$ .

Notons que le temps physique à simuler et la taille du maillage rendent ici les simulations d’une durée de 1 à 2 semaines sur un PC linux à 2Go de Ram et 3,5GHz de microprocesseur.

Les écoulements simulés sont comparés aux données expérimentales de [Fabre \(2006\)](#) et présentés dans la carte de configuration traditionnelle dans le domaine  $(J_G, J_L)$  reporté sur la figure [8.22](#). Ils sont obtenus en faisant varier  $R_L$  pour chacune des trois configurations et en faisant varier le gradient de pression  $dP/dx$  de  $-0,5\text{mbar/m}$  à  $-125\text{mbar/m}$ .

Nous avons constaté que les écoulements annulaires  $EPSm$  sont tous instables pour les valeurs de vitesses superficielles fixées comme le laissait prévoir la figure [8.19](#). Ils évoluent vers des écoulements intermittents ce qui est en accord avec les résultats expérimentaux. A chaque fois, une instabilité capillaire apparaît qui rompt le cylindre en poches de gaz. Même si il est proche de la transition un point diffère cependant, pour  $J_G = 550\text{cm/s}$  et  $J_L = 100\text{mm/s}$  : l’écoulement annulaire est instable également alors que les expériences observent l’existence de l’écoulement annulaire.

Les écoulements à phases séparés stables sont pour l’essentiel des écoulements  $EPSnmC$ ,

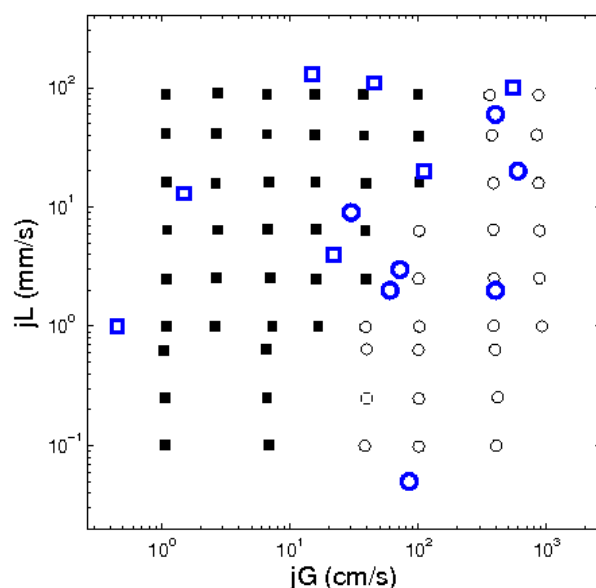


FIG. 8.22 – Carte de configuration dans le plan  $(J_G, J_L)$ . Expérience Fabre (2006) : ■ écoulement intermittent et ○ écoulement à phases séparées. Simulations : □ écoulements annulaire  $EPSm$  instables et O écoulements  $EPSnmS$  et  $EPSnmC$  stables.

donc avec le liquide localisé dans les arêtes. Pour toutes les valeurs du gradient de pression, ces écoulements restent à phases séparées. Un point est dans le domaine de l'observation des écoulements intermittents : il s'agit d'un écoulement  $EPSnmS$  où le liquide mouille notamment une surface entière, ici à  $J_G = 30\text{cm/s}$  et  $J_L = 9\text{mm/s}$ . Ici également, cet écoulement reste à phases séparées et n'évolue pas vers un écoulement intermittent.

### Transition : compétition entre capillarité et inertie

Nous souhaitons maintenant caractériser en fonction des paramètres adimensionnels la transition entre les configurations à phase séparée et intermittent. Pour ce type d'écoulement et de transition, quels sont les paramètres sans dimension pertinents ? Nous reprenons ici l'analyse faite par Fabre (2006). L'analyse dimensionnelle montre que la tension de surface est la force dominante qui doit être prise comme référence. Si l'on prend comme échelle de longueur la hauteur  $H$  du canal, la tension de surface domine la gravité  $Eu \sim 0, 1$ . L'effet de celle-ci est de stratifier les phases, mais ici cet effet est négligeable. Si l'on considère la vitesse du mélange  $J = J_L + J_G$ , la tension de surface domine la viscosité :  $Ca = \mu_L J / \sigma < 1$  mais l'inertie du liquide entre en compétition avec elle : le nombre de Weber  $We = \rho_L J^2 H / \sigma$  varie de  $10^{-3}$  à  $10^3$ . Aussi le nombre de Weber apparaît comme un paramètre essentiel du problème. Un autre paramètre essentiel est le rapport des vitesses superficielles  $j = J_G / J_L$  qui varie de  $10^{-1}$  à  $10^5$ . Par ailleurs, les résultats expérimentaux semblent montrer que l'on a un écoulement à phases séparées lorsque  $j$  est très

grand et un écoulement intermittent lorsque  $j$  est petit.

Nous allons par conséquent suivre la démarche proposée par Fabre (2006) et représenter une carte de configuration en fonction de ces deux nombres adimensionnels pertinents  $j$  et  $We$ .

Les résultats expérimentaux de Fabre (2006) montrent que les configurations observées expérimentalement se répartissent en deux régions bien distinctes. Une loi de puissance a été proposée qui donne un nombre de Weber critique  $We_c$  qui sépare les deux régimes d'écoulement :

$$We_c^{1/2} = \alpha j^{-2/5} \quad (8.14)$$

où Fabre (2006) propose  $\alpha \sim 40$ . Nous avons reporté sur la figure 8.23 les observations expérimentales de Fabre (2006) et les résultats numériques. On constate que l'accord est très bon. La courbe de transition (8.14) y est également reportée et la valeur  $\alpha = 20$  semble décrire de manière plus fine la transition de l'ensemble des résultats.

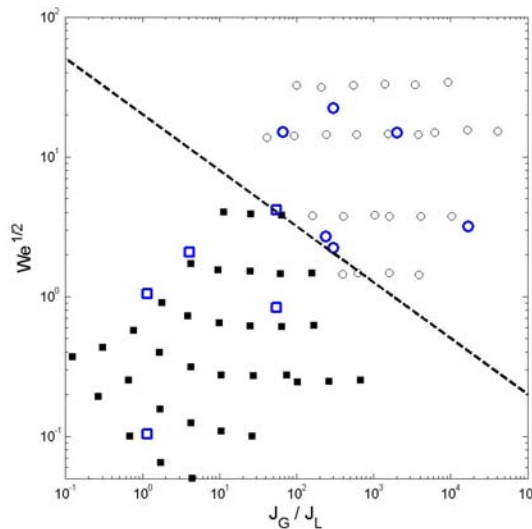


FIG. 8.23 – Diagramme de stabilité dans le plan  $j = J_G / J_L We^{1/2}$ . Expériences Fabre (2006) : ■ écoulement intermittent et ○ écoulement à phases séparées. Simulations : □ écoulements annulaires *EPSm* instables et ○ écoulements *EPSnmS* et *EPSnmC* stables. (- -) équation 8.14 avec  $\alpha = 20$ .

#### 8.4.2 En canal 3D de pile

Nous souhaitons finir ce chapitre en illustrant l'effet de la paroi non mouillante (GDL) du canal de la pile et de son incidence sur les transitions. Ainsi, dans un canal de pile, la présence de la paroi hydrophobe qu'est la GDL provoque des transitions particulières, comme l'illustre la figure 8.24.

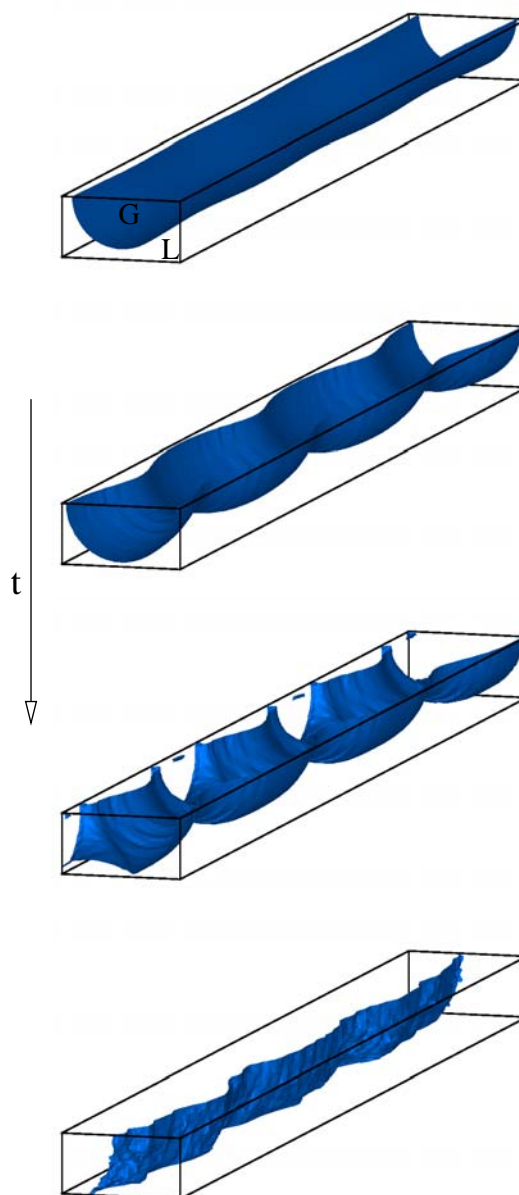


FIG. 8.24 – En canal de pile : la paroi "gauche" est hydrophobe (GDL). Seule la moitié inférieure du canal est présentée. Transition entre un écoulement  $EPSm$  ( $R_L = 0,5$ ,  $J_G = 22\text{cm/s}$ ,  $J_L = 4\text{mm/s}$ ) vers un écoulement  $EPSnmS$  où le liquide mouille totalement la paroi opposée à la GDL et partiellement les parois adjacentes.  $t = 50\text{ms}$ ,  $58\text{ms}$ ,  $59\text{ms}$  et  $68\text{ms}$ .

Dans ce cas, le régime de départ est un écoulement annulaire pour  $R_L = 0,5$ . L'instabilité capillaire se développe et casse dans un premier temps le cylindre en formant des bulles de gaz. Du fait du volume initial du cylindre, les bulles touchent les paroi et provoquent le démoillage du liquide. La présence de la GDL vient modifier le comportement qui aurait été en son absence similaire à celui de la figure 8.20. Les poches de gaz ne peuvent garder leur forme sphérique car

le liquide ne peut mouiller la GDL. La GDL est alors démouillée progressivement et le régime évolue vers un régime à phases séparées de type  $EPSnmS$ , où le liquide mouille la paroi opposée à la GDL et une partie des deux parois adjacentes.

On met ici en évidence une transition intéressante pour le fonctionnement de la pile : un écoulement annulaire, à éviter pour le fonctionnement de la pile car il mouille entièrement la GDL, peut, en fonction du rayon du cylindre de gaz, évoluer sous l'effet de l'instabilité capillaire vers un écoulement intermittent qui ne peut exister compte tenu de l'hydrophobie de la GDL et se transforme en un écoulement à phases séparées  $EPSnmS$ , quant à lui bénéfique pour la pile.

Ce résultat montre également que les cartes de configuration et les transition qui y sont reportées pour des canaux avec quatre parois identiques sont à utiliser avec précaution pour une utilisation en canal de pile.

## 8.5 Conclusion

Ce chapitre s'est divisé en fait en deux parties complémentaires. La première a porté sur l'étude numérique de deux instabilités de nature complètement différente mais toutes deux potentiellement présentes en écoulement diphasique en mini-canaux ou mini-tubes. D'une part, une instabilité visqueuse peut apparaître en régime stratifié et provoquer la transition vers un régime intermittent. Nous avons retrouvé numériquement le diagramme de stabilité de la théorie linéaire développée par [Charru & Fabre \(1994\)](#). D'autre part, une instabilité capillaire peut provoquer la transition d'un régime à phase séparée vers un régime intermittent. Nous avons montré la bonne concordance entre les résultats numériques et la théorie linéaire de [Goren \(1962\)](#), à la fois en tube et en canal. La comparaison des taux d'amplification de ces deux types de perturbation montre que l'instabilité capillaire est plus rapide et sera par conséquent la première à déstabiliser l'interface et provoquer la transition.

La seconde partie a porté sur l'organisation des phases dans un mini-canal et sur l'étude de la stabilité des écoulements géométriquement possibles. Dans un premier temps, le rapport des vitesses superficielles a été relié au taux de remplissage en liquide  $R_L$ . La stabilité des écoulement à phase séparée a ensuite été étudiée numériquement et comparée aux expériences. Les résultats numériques confirment la transition  $We_c^{1/2} = \alpha j^{-2/5}$  proposée par [Fabre \(2006\)](#) qui a l'intérêt de faire intervenir des paramètres adimensionnels caractéristiques.

Ce dernier chapitre a enfin et surtout démontré le potentiel du code JADIM pour reproduire les instabilités présentes en mini-canaux et mini-tube. Il est ainsi possible d'étudier les transitions de configuration observées dans de tels systèmes diphasiques en prenant notamment en considération la présence d'une paroi hydrophobe, élément caractéristique d'un canal de pile.

# Conclusion et perspectives

L'objectif du travail réalisé dans cette thèse était double. Il s'agissait d'une part de progresser dans la compréhension des mécanismes physiques présents dans les mini-canaux d'alimentation de la pile à combustible et d'autre part de développer un outil de simulation numérique permettant d'y décrire des écoulements et les transitions entre configurations.

Les développements numériques réalisés dans JADIM ont consisté à introduire dans le module de "suivi d'interface" un modèle de mouillage basé sur la description de l'angle apparent de la ligne de contact. Les modélisations numériques du mouillage statique et dynamique ont ainsi été développées et validées en situations bidimensionnelle et tridimensionnelle. L'implémentation de l'hystérésis de l'angle de contact, plus délicate, a été réalisée et validée en situation bidimensionnelle et axisymétriques puis initiée en situation tridimensionnelle. Afin de compléter les rares données existantes, une expérience a été nécessaire et mise en oeuvre afin de mesurer l'hystérésis de l'angle de contact pour les matériaux constituant les mini-canaux d'une pile à combustible. Les mesures réalisées ont permis de mettre en évidence que l'hystérésis est particulièrement importante pour les deux matériaux présents dans un canal de pile.

Nous avons dans le cadre de ce travail considéré deux problématiques principales. Ces deux problématiques correspondent sensiblement aux phénomènes présents dans les minicanal d'une pile à combustible, selon que l'on se place au début du minicanal, ou à la fin du minicanal. En début de canal, l'eau générée au coeur de la pile est introduite par la GDL sous forme de petites gouttes. L'étude de la dynamique (formation, migration) de ces gouttelettes constitue la première problématique d'étude. En fin de canal, les gouttelettes introduites le long du canal ont coalescées pour former un écoulement à différentes configurations de répartition spatiale des phases. La deuxième problématique correspond à l'étude de ces écoulements et à leur transition entre configurations.

Le premier axe d'étude est donc celui de la migration des gouttelettes formées par la production de l'eau sur la zone de diffusion gazeuse (GDL). La situation bidimensionnelle de la

migration d'une goutte sous l'effet de la gravité et de l'écoulement d'un gaz en régime inertiel a dans un premier temps été traitée. Les résultats numériques obtenus ont permis de mettre en évidence les critères de mise en mouvement associés qui dépendent fortement de l'hystérésis de l'angle de contact. Ainsi la mise en mouvement gravitaire apparaît via un nombre d'Eotvos critique et celle de l'entraînement par un écoulement d'un gaz via un nombre Weber critique. Ces deux seuils varient linéairement avec l'hystérésis caractérisé par  $(\cos \theta_R - \cos \theta_A)$ . Appliquées dans les conditions de la pile, ces relations montrent qu'une goutte ne peut se mettre en mouvement sous l'effet de la gravité et très difficilement sous l'effet de l'écoulement gazeux.

L'étude de la migration 3D a permis de préciser les conditions de migration d'une goutte dans les conditions d'une pile à combustible. Pour cela, la position initiale de la goutte, la gravité, la mouillabilité des parois du canal, la température et la coalescence entre goutte ont été considérées. Les résultats montrent que la migration n'a lieu que si elle rencontre une paroi de mouillabilité différente, c'est à dire que le moteur du mouvement est la différence de mouillabilité. Les gouttes migrent toujours de la paroi non mouillante vers la paroi mouillante avec une vitesse que nous avons montré être donnée par la célérité de l'onde capillaire de longueur d'onde imposée par le rayon initial de la goutte.

Le second axe concerne l'évolution et la stabilité de la répartition spatiale des phases lors du remplissage progressif des canaux d'une pile. Nous avons dans un premier temps considéré le remplissage quasistatique d'un canal de pile et les différents scénarii possibles. Cette analyse a permis de préciser les conditions nécessaires sur la géométrie du canal et les propriétés de mouillage des parois du canal permettant un fonctionnement optimal, c'est-à-dire laissant disponible pour le gaz une surface maximale de GDL pour un taux de liquide donné. Ainsi les parois du canal doivent être non mouillantes (angle de mouillage inférieur à  $90^\circ$ ) et l'option d'une section rectangulaire doit être choisie de sorte que l'un des petits cotés corresponde à la surface de la GDL.

Cette approche quasistatique a ensuite été complétée par une étude de la stabilité des interfaces des écoulements à phases séparées en mini-canaux et mini-tubes. Pour cela, la déstabilisation de l'interface sous l'effet d'instabilité visqueuse ou capillaire a été considérée. La comparaison des résultats numériques avec les solutions analytiques des taux de croissance respectifs de ces instabilités (Charru & Fabre (1994), Goren (1962)) a permis de démontrer les capacités du code JADIM à reproduire le développement de telles instabilités, c'est-à-dire son potentiel pour reproduire les changements de configuration. La comparaison des taux d'amplification de ces deux types de perturbation montre clairement que l'instabilité capillaire est plus rapide et sera par conséquent la première à déstabiliser l'interface et provoquer la transition. Un certain nombre de simulations ont ensuite été réalisées pour étudier les configurations d'écoulement en mini-canal. Les résultats ont été comparés au diagramme de configuration obtenu expérimentalement par

Fabre (2006). Les résultats reportés dans un diagramme de configuration défini par le rapport des vitesses superficielles et le nombre de Weber ont permis de montrer la pertinence de cette représentation et son caractère plus général que la traditionnelle représentation dans le diagramme des vitesses superficielles de gaz et de liquide. La prise en compte de la présence d'une paroi hydrophobe a mis en évidence que celle-ci avait un effet important sur la transition et la forme des cartes de configurations.

Les perspectives à ce travail sont nombreuses et certaines sortent largement du cadre des études des écoulements en mini-canal d'une pile à combustible. Ce travail a ainsi démontré le potentiel du code JADIM pour reproduire les instabilités présentes en mini-canaux et mini-tubes. Il est maintenant possible d'étudier les transitions de configuration observées dans de tels systèmes diphasiques en prenant notamment en considération la présence d'une paroi hydrophobe, élément caractéristique d'un canal de pile. L'utilisation intensive du code est ainsi envisageable afin de mener une campagne paramétrique de simulations permettant de proposer des cartes de configurations et critères de transition en canal dont une des parois est hydrophobe.

Concernant l'aspect développement numérique, une étude comparative des différents modèles d'angle dynamique apparent peut être entreprise. Le modèle de Dussan a été implémenté dans le code JADIM mais il serait important de le comparer au modèle de de Gennes (1986). LeGrand *et al.* (2005) et Rio (2005) ont montré notamment une différence d'évolution d'angle apparent pour l'angle de recul. Si la comparaison peut d'ors et déjà être faite en deux dimensions, elle sera encore plus pertinente en trois dimensions, notamment en étudiant la forme d'une goutte descendant un plan incliné (LeGrand *et al.* (2005)). En fonction des paramètres physiques, la goutte peut prendre différentes formes, arrondie ou à coin, ou encore s'écouler en laissant périodiquement des petites perles dans son sillage. L'étude numérique pourra ainsi être confrontée à l'étude expérimentale de LeGrand *et al.* (2005). Ici le choix du modèle d'angle dynamique peut être déterminant pour décrire correctement la dynamique de ces gouttes.

La poursuite du travail entrepris devrait permettre à courte échéance la modélisation de l'hystérésis de l'angle de contact ainsi que de l'angle dynamique en situation tridimensionnelle. La prise en compte de ces phénomènes physiques bien particuliers ouvre alors la porte à des problèmes intéressants, outre celui qui vient d'être cité.

Parmi ces problèmes à étudier, nous pouvons en sélectionner trois, représentés dans la figure 8.25. L'étude initiée dans ce travail sur la migration d'une goutte sous l'effet d'un contraste de mouillabilité (figure 8.25-a) présente un intérêt tout à fait original. Il s'agira dans un premier temps de confronter les résultats numériques avec les récents travaux expérimentaux de CAILLIES-REYSSAT (2007) où la migration d'une goutte est étudiée sur une paroi présentant un gradient de mouillabilité.



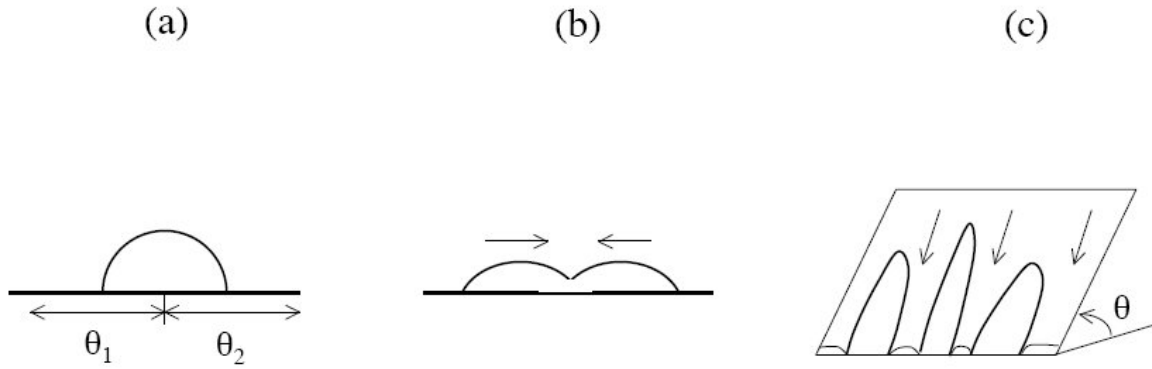


FIG. 8.25 – Problèmes en perspective. (a) Migration de goutte posée sur une discontinuité de mouillage. (b) Coalescence et mouillage sur une paroi. (c) Démouillage d'un film ruisselant

Il serait dans un premier temps très intéressant de comparer les résultats du code JADIM avec d'autres codes tels que celui développé par l'équipe de Peter Spelt à l'Impérial College de Londres (figure 8.25-b). Deux approches ont été développées par l'équipe de Peter Spelt. L'une est basée sur une méthode Level Set modélisant l'angle de glissement (Spelt (2005)) et l'autre est une méthode d'interface diffuse (Ding & Spelt (2007)). Le premier cas-test de référence pourrait être la coalescence d'une goutte sur une surface mouillante. Les premiers résultats obtenus avec JADIM montrent une évolution du dimple résultant de la coalescence qui évolue comme  $\sim t^{1/2}$  en accord avec les travaux expérimentaux (Ristenpart *et al.* (2006), Biance *et al.* (2004)).

Enfin, l'étude des films ruisselants et de l'instabilité capillaire qui peut se développer à leur surface et entraîner le démouillage de la paroi est un sujet d'intérêt fondamental (Podgorski *et al.* (1999), Rio & Limat (2006)) mais également très appliqué. En effet, la compréhension de ce mécanisme physique conditionne par exemple le dimensionnement de bon nombres de contacteur gaz liquide où le liquide est utilisé pour réagir avec le gaz à des fins de traitement, par exemple de dépollution. Le procédé est optimisé par une surface d'échange maximale et une quantité de liquide ruisselant minimale, ce qui conduit à des films minces. Le démouillage des parois se traduit par une réduction de la surface d'échange et des performances du contacteur.

# Bibliographie

- ADOUA, R. 2007 Hydrodynamique d'une bulle déformée dans un écoulement cisailé. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- AKBAR, M. K., PLUMMER, D. A. & GHIAASIAAN, S. M. 2003 On gas-liquid two-phase flow regimes in microchannels. *Int. J. Multiphase Flow* **29**, 855–865.
- ALBERT, F. & CHARRU, F. 2000 Small reynolds number instabilities in two-layer couette flow. *Eur. J. Mech. B-Fluids* **19**, 229–252.
- AMESTOY, P. R., DUFF, L. S. & L'EXCELLENT, J.-Y. 2000 Multifrontal parallel distributed symmetric and unsymmetric solvers. *Comput. Methods Appl. Mech. Eng.* **184**, 501–520.
- AUSSILLOUS, P. & QUÉRÉ, D. 2000 Quick deposition of a fluid on the wall of a tube. *PoF* **12** (10), 2367.
- AZAIEZ, M., BERGEON, A. & PLOURABOUÉ, F. 2003 Un nouveau préconditionneur pour les problèmes elliptiques à coefficients variables. *C. R. Acad. Sci.* **331** (7), 509–514.
- BAKER, O. 1954 Simultaneous flow of oil and gas. *Oil Gas J.* **53**, 185–195.
- BARAJAS, A. M. & PANTON, R. L. 1993 The effects of contact angle on two-phase flow in capillary tubes. *Int. J. Multiphase Flow* **19** (2), 337–346.
- BARENBLATT, G. 1996 *Scaling, self-similarity and intermediate asymptotics*. Cambridge University Press.
- BARNEA, D., LUNINSKI, Y. & TAITEL, Y. 1983 Flow pattern in horizontal and vertical two phase flow in small diameter pipes. *Can. J. Chem. Eng.* **61**, 617–620.
- BARTHELET, P., CHARRU, F. & FABRE, J. 1995 Experimental study of interfacial long waves in a two-layer shear flow. *J. Fluid Mech.* **303**, 23–53.
- BATAILLE, C. & BIRRAUX, C. 2006 Nouvelles technologies de l'énergie et la séquestration du dioxyde de carbone : aspects scientifiques et techniques. *Parlement français* .

- BENKENIDA, A. 1999 Développement et validation d'une méthode de simulation d'écoulements diphasiques sans reconstruction d'interfaces : Application à la dynamique des bulles de Taylor. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- BHAGA, D. & WEBER, M. 1981 Bubbles in viscous liquid : shape, wakes and velocities. *J. Fluid Mech.* **105**, 61–85.
- BIANCE, A.-L., CLANET, C. & QUÉRÉ, D. 2004 First step in the spreading of a liquid droplet. *Physical review E* **69**, 016301.
- BLAKE, T. D. 2006 The physics of moving wetting lines. *J. Colloid Interface Sci.* **299**, 1–13.
- BLAKE, T. D. & HAYNES, J. M. 1969 Kinetics of liquid/liquid displacement. *J. Colloid Interface Sci.* **30**, 421.
- BLANCO, A. 1995 Quelques aspects de l'écoulement d'un fluide visqueux autour d'une bulle déformable : une analyse par simulation directe. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- BONOMETTI, T. 2006 Développement d'une méthode de simulation d'écoulements à bulles et à gouttes. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- BONOMETTI, T. & MAGNAUDET, J. 2007 An interface-capturing method for incompressible two-phase flows. validation and application to bubble dynamics. *Int. J. Multiphase Flow* **33**, 109–133.
- BORIS, J. P. & BOOK, D. L. 1973 Flux-corrected transport : I. shasta, a fluid transport algorithm that works. *J. Comput. Phys.* **18**, 248–283.
- BOUSMAN, W., MCQUILLEN, J. & WITTE, L. C. 1996 Gas-liquid flow patterns in microgravity : effects of tube diameter, liquid viscosity and surface tension. *Int. J. Multiphase Flow* **22**, 1035–1053.
- BRACKBILL, J., KOTHE, D. B. & ZEMACH, C. 1992 A continuum method for modeling surface tension. *J. Comput. Phys.* **100**, 335–354.
- BRETHERTON, F. P. 1961 The motion of long bubbles in tubes. *J. Fluid Mech.* **10**, 166.
- CABAL, C. & GATIGNOL, C. 2005 Définition et implications du concept de voiture propre. *Assemblée Nationale et Sénat* .
- CAILLIES-REYSSAT, M. 2007 Speldeur et misère de l'effet lotus. PhD thesis, Université Paris VI.

- CALMET, I. 1995 Analyse par simulation des grandes échelles des mouvements turbulents et du transfert de masse sous une interface plane. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- CHARRU, F. & FABRE, J. 1994 Long waves at the interface between two viscous fluids. *Phys. Fluids* **6** (3), 1223–1235.
- CHEN, Q., RAMÉ, E. & GAROFF, S. 1995 The breakdown of asymptotic hydrodynamic models of liquid spreading at increasing capillary number. *Phys. Fluids* **7** (11), 2631–2639.
- CLIMENT, E. 1996 Dispersion de bulles et modification du mouvement de la phase porteuse dans des écoulements tourbillonnaires. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- COLEMAN, J. W. & GARIMELLA, S. 1999 Characterization of two-phase flow patterns in small diameter round and rectangular tubes. *Int. J. Heat Mass Transfer* **31**, 1758–1770.
- COLIN, C. & FABRE, J. 1995 Gas-liquid pipe flow under microgravity conditions : influence of tube diameter on flow pattern and pressure drops. *J. Adv. Space Research* **16**, 137–142.
- COX, R. G. 1986 The dynamics of the spreading of liquids on a solid surface. part 1 : Viscous flow. *J. Fluid Mech.* **168**, 169.
- CRANGA, J. 2002 Simulation numérique directe d'écoulements di- et tri-phasiques engendrés par l'injection de bulles dans un bain de métal liquide. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- DAMIANIDES, C. A. & WESTWATER, J. W. 1988 Two-phase flow patterns in a compact heat exchanger and in small tubes. In *Proc. 2nd UK Nat. Conf. on Heat Transfer*, , vol. 2, pp. 1257–1268.
- DIMITRIKAPOULOS, P. & HIGDON, J. J. L. 1997 Displacement of fluid droplets from solid surfaces in low reynolds number shear flows. *J. Comput. Phys.* **336**, 351–378.
- DIMITRIKAPOULOS, P. & HIGDON, J. J. L. 1998 On the displacement of three-dimensional fluid droplets from solid surfaces in low reynolds number shear flows. *J. Comput. Phys.* **377**, 189–222.
- DIMITRIKAPOULOS, P. & HIGDON, J. J. L. 1999 On the gravitational displacement of three-dimensional fluid droplets from inclined solid surfaces. *J. Comput. Phys.* **395**, 181–209.
- DIMITRIKAPOULOS, P. & HIGDON, J. J. L. 2001 On the displacement of three-dimensional fluid droplets to a plane wall in viscous pressure-driven flows. *J. Comput. Phys.* **435**, 327–350.
- DING, H. & SPELT, P. D. M. 2007 Inertial effects in droplets spreading : a comparison between diffuse-interface and level-set simulations. *J. Fluid Mech.* **576**, 287–296.

- DRAZIN, P. G. & REID, W. H. 1981 *Hydrodynamic Stability*. Cambridge University Press.
- DUCLAUX, V., CLANET, C. & QUÉRÉ, D. 2006 The effects of gravity on the capillary instability in tubes. *J. Fluid Mech.* **556**, 217–226.
- DUKLER, A., FABRE, J., MCQUILLEN, J. & VERNON, R. 1988 Flow pattern transition for gas-liquid flow in horizontal and inclined pipes. comparison of experimental data with theory. *Int. J. Multiphase Flow* **14**, 389–400.
- DUPONT, J.-B., LEGENDRE, D. & MORGANTE, A. M. 2007 Numerical simulation for two-phase flows in fuel cell mini-channels. *J. Fuel Cell Sci. & Tech.* **Sous presse**.
- DUQUENNOY, C. 2000 Développement d'une approche de simulation numérique directe de l'ébullition en paroi. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- DURAI SWAMI, R. & PROSPERETTI, A. 1992 Orthogonal mapping in two dimensions. *J. Comput. Phys.* **98**, 254–268.
- DUSSAN, E. B. 1976 The moving contact line : the slip boundary condition. *J. Fluid Mech.* **77**, 665.
- DUSSAN, E. B. 1985 On the ability of drops or bubbles to stick to non-horizontal surfaces of solids. part 2. small drops or bubbles having contact angles of arbitrary size. *J. Fluid Mech.* **151**, 1–20.
- DUSSAN, E. B. & CHOW, R. T. P. 1983 On the ability of drops or bubbles to stick to non-horizontal surfaces of solids. *J. Fluid Mech.* **137**, 1–29.
- DUSSAN, E. B., RAMÉ, E. & GAROFF, S. 1991 On identifying the appropriate boundary conditions at a moving contact line : an experimental investigation. *J. Fluid Mech.* **230**, 97–116.
- FABRE, J. 2006 Visualisation des écoulements diphasiques dans des mini-canaux. In *Contrat Renault-IMFT - Groupe Interface. Toulouse. France*.
- FABRE, J., TRUPIN, C., TURNEAU, J. & GARCIA, J. 2004 *Ecoulements diphasiques dans des mini-tubes*. Rapport IMFT-Interface, Contrat Renault Phase 0.
- FINLOW, D. E., KOTA, P. R. & BOSE, A. 1996 Investigation of wetting hydrodynamics using numerical simulations. *Phys. Fluids* **8** (2), 302.
- FURMIDGE, C. G. L. 1962 Studies at phase interfaces. i the sliding of liquid drops on solid surfaces and theorie for spray retention. *J. Colloid Sci.* **17**, 309–324.
- GALBIATI, L. & ANDREINI, P. 1992a Flow pattern transition for vertical downward two-phase flow in capillary tubes. inlet mixing effects. *Int. J. Heat Mass Transfer* **19**, 791–799.

- GALBIATI, L. & ANDREINI, P. 1992*b* The transition between stratified and annular regimes for horizontal two-phase flow in small diameter tubes. *Int. J. Heat Mass Transfer* **19**, 185–190.
- DE GENNES, P.-G. 1986 Deposition of langmuir-blodgett layers. *Colloid Polymer Sci.* **264**, 463–465.
- GLASNER, K. B. 2005 A boundary integral formulation of quasi-steady fluid wetting. *J. Comput. Phys.* **207**, 529 – 541.
- GOLPAYGAN, A. & ASHGRIZ, N. 2005 Effects of oxidant fluid properties on the mobility of water droplets in the channels of a pem fuel cell. *Int. J. Energy Res.* **29**, 1027–1040.
- GOREN, S. L. 1962 The instability of an annular thread of fluid. *J. Fluid Mech.* **12**, 309–319.
- GOVIER, G. & AZIZ, K. 1972 *The flow of complex mixtures in pipes*. Van Nostrand.
- HEPNER, B., KING, C. & LITTLES, J. 1975 Zero-g experiments in two-phase fluid flow regimes. *ASME Paper 75-ENAs-24* .
- JACQMIN, D. 2000 Contact-line dynamics of a diffusive fluid interface. *J. Fluid Mech.* **402**, 57–88.
- JAMET, D., TORRES, D. & BRACKBILL, J. 2002 On the theory and computation of surface tension : The elimination of parasitic currents through energy conservation in the second-gradient method. *J. Comput. Phys.* **182**, 262–276.
- KERGUERIS, J. & SAUNIER, C. 2005 Perspectives d'évolution du prix des hydrocarbures à moyen et long terme. *Sénat* .
- KHENNER, M. 2004 Computation of the material indicator function near the contact line (in tryggvason's method). *J. Comput. Phys.* **200**, 1–7.
- LAFaurIE, B., NARDONE, C., SCARDOVELLI, R., ZALESKI, S. & ZANETTI, G. 1994 Modelling merging and fragmentation in multiphase flows with surfer. *J. Comput. Phys.* **113**, 134–147.
- LAFFITTE, P. & SAUNIER, C. 2006 Apports de la science et de la technologie au développement durable - tome 1. *Parlement français* .
- LARMINIE, J. & DICKS, A. 1999 *Fuel Cell Systems explained*. Wiley.
- LAVI, B. & MARMUR, A. 2004 The exponential power law : partial wetting kinetics and dynamic contact angles. *Colloid Surf. A* **250**, 409–414.
- LEGENDRE, D. 1996 Quelques aspects des forces hydrodynamiques et des transferts de chaleur sur une bulle sphérique. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- LEGRAND, N., DAERR, A. & LIMAT, L. 2005 Shape and motion of drops sliding down an inclined plane. *J. Fluid Mech.* **541**, 293–315.

- LI, X. & POZRIKIDIS, C. 1996 Shear flow over a liquid drop adhering to a solid surface. *J. Fluid Mech.* **307**, 167–190.
- LIU, H., K., S., MARELLA, S. & UDAYKUMAR, H. S. 2005 Sharp interface cartesian grid method ii : A technique for simulating droplets interactions with surfaces of arbitrary shape. *J. Comput. Phys.* **210**, 32–54.
- MAGNAUDET, J. & LEGENDRE, D. 1996 Simulation numérique d'un jet diphasique en présence d'un écoulement traversier. rapport d'avancement n°1/mai 1996. *contrat Aérospatiale/IMFT-Interface* .
- MARCHAND, M. 1998 Gestion de l'eau dans les piles à combustible. PhD thesis, INP Grenoble.
- MARMUR, A. 1983 Equilibrium and spreading of liquids on solid surfaces. *Adv. Colloid Interf. Sci.* **19**, 75–102.
- MARSH, J. A., GAROFF, S. & DUSSAN, E. B. 1993 Dynamic contact angles and hydrodynamics near a moving contact line. *Phys. Rev. Letters* **70** (18), 2778–2782.
- MATHIEU, B. 2003 Etudes physique, expérimentale et numérique des mécanismes de base intervenant dans les écoulements diphasiques en micro-fluidique. PhD thesis, Université de Provence - Marseille.
- MORGANTE, A. M. 2006 Mesures expérimentales des angles de contact sur les matériaux des minicanaux de la pile à combustible. In *Données Renault*.
- MORGANTE, A. M. & FABRE, J. 2005 Two-phase flow in square mini-channels : flow pattern transition. In *3rd International Conference on Microchannels and Minichannels - Toronto, Ontario, Canada*.
- NGAN, C. G. & DUSSAN, E. B. 1989 On the dynamics of liquid spreading on solid surfaces. *J. Fluid Mech.* **209**, 191–226.
- OSHER, S. & FEDKIW, R. P. 2001 Level set methods : An overview and some recent results. *J. Comput. Phys.* **169**, 463–502.
- OSHER, S. & SETHIAN, J. A. 1988 Front propagating with curvature dependant speed : Algorithms based on hamilton-jacobi formulation. *J. Comput. Phys.* **79**, 12–49.
- PLATEAU, J. 1873 *Statique expérimentale et théorique des liquides soumis aux seules forces moléculaires*.. Gauthier-Villars.
- PODGORSKI, T. 2000 Puissellement en conditions de mouillage partiel. PhD thesis, Université Paris 6.

- PODGORSKI, T., FLESSELLES, J.-M. & LIMAT, L. 1999 Dry arches within flowing films. *Phys. Fluids* **11**(4), 845–852.
- PODGORSKI, T., FLESSELLES, J.-M. & LIMAT, L. 2001 Corners, cusps and pearls in running drops. *Phys. Rev. Lett.* **87**, 036102.
- POPINET, S. & ZALESKI, S. 1999 A front-tracking algorithm for accurate representation of surface tension. *Int. J. Numer. Meth. Fluid* **30**, 775–793.
- QUÉRÉ, D. 1999 Fluid coating on a fiber. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **31**, 347–384.
- RAYLEIGH, L. 1879 On the instability of jets. *Proc. London Math. Soc.* **10**, 4–13.
- RENARDY, M., RENARDY, Y. & LI, J. 2001 Numerical simulation of moving contact line problems using a volume-of-fluid method. *J. Comput. Phys.* **171**, 243–263.
- RIO, E. 2005 Gouttes, flaques et arches sèches : des lignes de contact en présence d'un écoulement. PhD thesis, Université Paris VI.
- RIO, E. & LIMAT, L. 2006 Wetting hysteresis of a dry patch left inside a flowing film. *Phys. Fluids* **18**, 032102.
- RISTENPART, W., MCCALLA, P., ROY, R. & STONE, H. 2006 Coalescence of spreading droplets on a wettable substrate. *Physical Review Letters* **97**, 064501.
- RIVERO, M. 1991 Etude par simulation numérique des forces exercées sur une inclusion sphérique par un écoulement accéléré. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse.
- DE RUIJTER, M. J., BLAKE, T. D. & CONINCK, J. D. 1999a Dynamic wetting studied by molecular modeling simulations of droplet spreading. *Langmuir* **15**, 7836–7847.
- DE RUIJTER, M. J., CONINCK, J. D. & OSHANIN, G. 1999b Droplet spreading : Partial wetting regime revisited. *Langmuir* **15**, 2209–2216.
- DE SAINT-VENANT, A. B. 1871 Théorie et équation générales du mouvement non permanent des eaux courantes. *Comptes Rendus des séances de l'Académie des Sciences* **73**, 147–154.
- SCARDOVELLI, R. & ZALESKI, S. 1999 Direct numerical simulation of free-surface and interfacial flow. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **31**, 567–603.
- SCHLEIZER, A. D. & BONNECAZE, R. T. 1999 Displacement of a two-dimensional immiscible droplet adhering to a wall in shear and pressure-driven flows. *J. Fluid Mech.* **383**, 29–54.
- SETHIAN, J. A. 1996 *Level Set Methods and Fast Marching Methods*. Cambridge University Press.



- SHEN, C. & RUTH, D. 1998 Experimental and numerical investigations of the interface profile close to a moving contact line. *Phys. Fluids* **10** (4), 789.
- SHIKHMURZAEV, Y. D. 1997*a* Moving contact lines in liquid/liquid/solid systems. *J. Fluid Mech.* **334**, 211–249.
- SHIKHMURZAEV, Y. D. 1997*b* Spreading of drops on solid surfaces in a quasi-static regime. *Phys. Fluids* **9** (2), 266–275.
- SNOEIJER, J. H., RIO, E., GRAND, N. L. & LIMAT, L. 2005 Self-similar flow and contact line geometry at the rear of cornered drops. *Phys. Fluids* **17**, 072101.
- SPELT, P. D. M. 2005 A level-set approach for simulations of flows with multiple moving contact lines with hysteresis. *J. Comput. Phys.* **207**, 389–404.
- SUO, M. & GRIFFITH, P. 1964 Two-phase flow in capillary tubes. *J. Bas. Engng* **86**, 576–582.
- TAITEL, Y. & BARNEA, D. 1980 Modeling flow pattern transitions for steady upward gas-liquid flow in vertical tubes. *AIChE J.* **26**, 345–354.
- TAITEL, Y. & DUKLER, A. E. 1976 A model for predicting flow regime transitions in horizontal and near horizontal gas-liquid flow. *AIChE J.* **22**, 47–55.
- TAITEL, Y. & DUKLER, A. E. 1980 Flow pattern transition for gas-liquid flow in horizontal and inclined pipes. comparison of experimental data with theory. *Int. J. Multiphase Flow* **6**, 217–225.
- TAYLOR, G. 1961 Deposition of a viscous fluid on the wall of a tube. *J. Fluid Mech.* **10**, 161.
- TRIPLETT, K. A., GHIAASIAAN, S. M., ABDEL-KHALIK, S. I. & SADOWSLI, D. L. 1999 Gas-liquid two-phase flow in microchannels. part i : two-phase flow patterns. *Int. J. Multiphase Flow* **25**, 377–394.
- TRYGGVASON, G., BUNNER, B., ESMAEELI, A., JURIC, D., AL-RAWAHI, N., TAUBER, W., HAN, J., NAS, S. & JAN, Y. J. 2001*a* A front-tracking method for the computations of multiphase flow. *J. Comput. Phys.* **169**, 708–759.
- TRYGGVASON, G., BUNNER, B., ESMAEELI, A., JURIC, D., AL-RAWAHI, N., TAUBER, W., HAN, J., NAS, S. & JAN, Y.-J. 2001*b* A front-tracking method for the computations of the multiphase flow. *J. Comput. Phys.* **169**, 708–759.
- TURNAU, J.-R. & FABRE, J. 2005 Interface patterns between still gas and liquid in horizontal tubes. *Phys. Fluids* **17**, 113303.
- UNVERDI, S. O. & TRYGGVASON, G. 1992 A front-tracking method for viscous, incompressible, multi-fluid flows. *J. Comput. Phys.* **100**, 25–37.

- VOINOV, O. V. 1976 Hydrodynamics of wetting. *Fluid Dyn.* **11** (5), 714.
- WALLIS, G. 1969 *One-dimensional two phase flow*. McGraw-Hill, New York.
- WÖLK, G., DREYER, M. & RATH, H. J. 2000 Flow patterns in small diameter vertical non-circular channels. *Int. J. Multiphase Flow* **26**, 1037–1061.
- YANG, C.-Y. & SHIEH, C.-C. 2001 Flow pattern of air-water and two-phase r-134a in small circular tubes. *Int. J. Multiphase Flow* **27**, 1163–1177.
- YANG, X. G., ZHANG, F. Y., LUBAWY, A. L. & WANG, C. Y. 2004 Visualization of liquid water transport in a pefc. *Electrochem. Solid-State Lett.* **7** (11), A408–A411.
- ZHAO, L. & REZKALLAH, K. 1994 Gas-liquid flow patterns at microgravity. *Int. J. Multiphase Flow* **19**, 751–763.
- ZOSEL, A. 1993 Studies of the wetting kinetics of liquid drops on solid surfaces. *Colloid Polym. Sci.* **271**, 680–687.