



الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

**UNIVERSITE DES FRERES MENTOURI-CONSTANTINE 1
FACULTE DES SCIENCES DE LA TECHNOLOGIE
DEPARTEMENT DE GENIE MECANIQUE**

N° d'ordre :/Doct/2020

Série : /GM/2020

THESE

Présentée Par

Samia Bekkouche

Pour l'obtention du Diplôme de

Doctorat en Sciences en Génie Mécanique

Spécialité : Energétique

THEME

Simulation numérique de l'écoulement dû à une réaction chimique dans les systèmes non isothermes liquides-liquides

Application: Système liquide-liquide immiscibles

Soutenue le

Devant la commission d'examen :

Président:	Smaïl Benisaad	Prof. Université des Frères Mentouri, Constantine 1
Rapporteur:	Mahfoud Kadja	Prof. Université des Frères Mentouri, Constantine 1
Examineurs:	Omar Kholai	Prof. Université des Frères Mentouri, Constantine 1
	Fateh Mebarek-Oudina	MCA. Université du 20 Aout 55, Skikda
	Yassine Kabar	MCA. Ecole Nationale Polytechnique, Constantine 1

بِسْمِ اللَّهِ الرَّحْمَنِ الرَّحِيمِ

Résumé

Dans ce travail, une analyse numérique bidimensionnelle de l'état instable d'un système réactif à deux couches liquides non miscibles, non isothermes remplissant un réacteur à deux plaques de verre parallèles, appelée cellule de Hele-Shaw, disposé verticalement, dans le champ de gravité, a été réalisée.

Nous nous focalisons sur le comportement général de l'instabilité Chemo hydrodynamique générée par l'effet combiné d'une réaction de neutralisation entre un acide et une base et les instabilités induites par la flottabilité dans une cellule de Hele Shaw.

L'évolution temporelle de l'instabilité et la vérification des effets : (1) du rapport des concentrations initiales acide/base, (2) de l'espace entre les deux plaques de la cellule (3) de la gravité et (4) de la chimie sur la structure de l'écoulement produit dans la cellule et sur l'avancement des doigts de convection, sans oublier la détermination des profils de vitesse, de concentration et de température, étaient les objectifs primordiaux de la thèse.

Le modèle mathématique régissant le phénomène a été résolu numériquement par le CFD logiciel COMSOL MultiPhysics basé sur la méthode des éléments finis et une validation des calculs en faisant une comparaison avec des données expérimentales a été effectuée.

Les résultats obtenus montrent que cet outil numérique est prometteur pour la bonne compréhension des instabilités réactives qui se produisent lorsque deux fluides non miscibles entrent en contact.

Mots clés: *Système réactif liquide-liquide; Cellule de Hele-Shaw; diffusion; modèles Chemo hydrodynamiques*

Abstract

In this work, a two-dimensional numerical analysis of the unstable state of an reactive system of two immiscible, non-isothermal liquid layers filling a reactor formed by two parallel glass plates, called Hele-Shaw cell, vertically disposed, in the gravity field, has been achieved.

We are interested in the general behavior of the chemo hydrodynamic instability generated by the coupling of a neutralization reaction between an acid and a base and the instabilities induced by buoyancy in a Hele Shaw cell.

The temporal evolution of the instability and the verification of the effects: (1) of the ratio of the initial acid / base concentrations, (2) of the space between the two plates of the cell (3) of the gravity and (4) of the chemistry, on the structure of the flow produced in the cell and on the advancement of the convection fingers, not forgetting the determination of the velocity, concentration and temperature profiles, were the primary objectives of the thesis.

The mathematical model governing the phenomenon was solved numerically by the CFD software COMSOL MultiPhysics based on the finite element method and a validation of the calculations by making a comparison with the experimental data was performed.

The results obtained show that this numerical tool is promising for the good understanding of the reactive instabilities which occur when two immiscible fluids come into contact.

Keywords: *Liquid-liquid reactive system; Hele-Shaw cell; diffusion; chemo hydrodynamic patterns.*

هذه الدراسة تبحث في تأثيرات التفاعل بين الجاذبية الأرضية والعمليات الكيميائية في الخلايا الحيوانية. تم إجراء تحليل لمنتجات الأبعاد للحالات غير المستقرة لضمان تفاعلها مع بيئاتها. تم إجراء تحليل لمنتجات الأبعاد للحالات غير المستقرة لضمان تفاعلها مع بيئاتها. تم إجراء تحليل لمنتجات الأبعاد للحالات غير المستقرة لضمان تفاعلها مع بيئاتها.

نحن مهتمون بمسألة الاستقرار الكيميائي الهيدروليك الناتج عن اقتران الأفعال المتبادل بين الأبيات لأ والقاعدة ودعم الاستقرار الناجم عن الطفو في خلية Hele Shaw.

التطور الزمني لدلو الاستقرار والتدفق في التآثيرات: (1) نسبة التركيزات الأليية للحمض/القاعدة ، (2) المسافة بين حولي الخلية ، (3) الجاذبية و (4) تأثير الكيمياء على شكل التدفق الناتج في الخلية وعلو تقدم أصابع الحمل الحراري ، دون إغفال تحديد السرعة والتركز ويملاح درجة الحرارة ، هي الأهداف الأساسية للأطروحة.

تم حل النموذج الرياضي الذي يحكم الظاهرة عددياً بواسطة برنامج CFD COMSOL MultiPhysics بناءً على طريقة العناصر المحدودة. تم إجراء التحقق من صحة الحسابات عن طريق إجراء مقارنة مع البيانات التجريبية.

تظهر النتائج التي تم الحصول عليها من هذه الأداة العددية واعدة للفهم الجيد لعللا الاستقرار التفاعلي الذي يحدث عند امتزاج سائلين غير قابلين للامتزاج.

الكلمات الرئيسية : التفاعل بين السائل - سائل ؛ خلية هلويد شو ؛ الانتشار ؛ الأنظمة الهيدروديناميكية الكيائية

Dédicaces

A la mémoire de mon très cher père,

A maman et ma sœur Meriem pour leurs soutiens continus pendant toutes ces années,

A Karim et mes enfants Meriem et Adel,

A toute ma famille,

Je dédie ce travail.

Remerciements

Je tiens à remercier tout d'abord Monsieur Mahfoud Kadja, professeur à l'université de Constantine1 pour m'avoir proposé ce sujet de thèse et pour m'avoir encadré durant ces années.

Je remercie également Monsieur Smail Benissaad professeur à l'université de Constantine1 pour m'avoir fait l'honneur d'avoir présidé mon jury de thèse.

Je me dois aussi de remercier grandement, Monsieur Omar Kholai Professeur à l'université de Constantine1, Monsieur Fateh Mebarek-Oudina, Maître de conférences classe A à l'université du 20 Aout 55-Skikda et Monsieur Yassine Kabar Maître de conférences classe A à l'Ecole Nationale Polytechnique, Constantine1, de m'avoir fait l'honneur d'être membres du jury de ma thèse.

Je veux également remercier Monsieur Salim Boulahrouz Enseignant chercheur à l'Université Abbès Laghrour Khenchela pour m'avoir axé sur la modélisation par Comsol, aussi je remercie chaleureusement Madame S. Greibi Maître de conférences classe B à l'université du 20 Aout 55-Skikda qui m'a appris les bases de la modélisation par Comsol.

J'en viens à mes soutiens moraux, qui furent nombreux. Il me faut tout d'abord remercier mes parents pour leur soutien inconditionnel et ma sœur Meriem pour ces encouragements continus. Merci à toute ma famille et merci à mes amies qui m'ont encouragé spécialement Soumia Teyar et Hassina Gheribi.

Table des Matières

Résumé	I
Abstract	II
Dédicaces	IV
Remerciements.....	V
Table des Matières.....	VI
Liste des Figures.	X
Liste des Tableaux.	XIV
Liste des symboles.....	XV

Introduction générale

1. Contexte général	2
2. Le travail présenté	3
2.1. Objectifs	3
3. Contenu de la thèse.....	3

Chapitre 01: Synthèse Bibliographique

1. Introduction	7
2. Définitions	8
2.1. Cellule de Hele-Shaw	8
2.2. Miscibilité et immiscibilité.....	9
2.3. Émulsion.....	9
2.4. Advection.....	9
2.5. Diffusion.....	9
2.6. Réaction chimique	10
2.7. Réaction de neutralisation	10
2.8. Réaction liquide-liquide	10
2.9. Vitesse (taux) de réaction	10

2.10. Concept d'interface.....	11
2.11. Interface Liquide-Liquide.....	11
2.12. Effet Soret et effet Dufour [6]	12
2.13. Instabilité hydrodynamique	12
2.14. Instabilité de Rayleigh-Bénard	13
2.15. Notion de tension de surface	13
2.16. Structures de réaction-diffusion (ou Modèles de Turing)	13
2.17. Système à réaction-diffusion	14
3. phénoménologie des instabilités dans les systèmes a deux couches de fluide immiscibles.....	14
3.1. Systèmes non réactifs	14
3.1.1. Instabilité de Rayleigh-Taylor (RT)	14
3.1.2. La double diffusion (DD)	15
3.1.3. La convection de la couche diffusive (DLC).....	16
3.2. Systèmes non réactifs	17
3.2.1. Instabilité Chemo-hydrodynamique	17
3. Revue bibliographique	18
4. Conclusion.....	23
Références bibliographique du premier chapitre.....	24

Chapitre 02: Analyse Mathématique

1. Introduction	30
2. Description du problème	30
3. Hypothèses de recherche.....	33
4. Approximation de la cellule de Hele-Shaw (flux de Hele-Shaw).....	34
5. Analogie entre cellule de Hele-Shaw et un milieu poreux.....	34
6. Mise en équations du problème.....	36
6.1. Équation de conservation de la matière	37
6.2. Équation de mouvement	37
6.3. Équation de l'énergie.....	38
6.4. Équation de Réaction-Diffusion-Advection	38
6.5. Conditions Initiales et aux limites	39

6.5.1.	Conditions Initiales	39
6.5.2.	Conditions aux limites à l'interface	39
6.5.3.	Conditions aux limites.....	40
7.	Conclusion.....	40
	Références Bibliographique Du Deuxième Chapitre.....	42

Chapitre 03: Analyse Numérique

1.	Introduction	45
2.	Comsol MultiPhysics	45
3.	Principe des éléments finis	46
4.	Étapes du calcul par éléments finis	46
5.	Discretisation des EDP par éléments finis	47
6.	CAS TESTS DE VALIDATION	48
6.1.	Premier test.....	48
6.1.1.	Convection naturelle dans une cavité carrée différentiellement chauffée.....	48
6.1.2.	Un peu d'histoire sur le phénomène étudié.....	49
6.1.3.	Convection naturelle	49
6.1.4.	Nombre de Rayleigh.....	49
6.1.5.	Configuration étudiée.....	50
6.2.	Deuxième test	54
6.2.1.	Convection de Marangoni	54
6.2.2.	Définition	54
6.2.3.	Tension superficielle ou énergie de surface	55
6.2.4.	Bref historique sur l'instabilité de Marangoni	55
7.	Sensibilité au maillage	58
8.	Conclusion.....	63
	Références Bibliographique Du Troisième Chapitre	64

Chapitre 04: Résultats et Interprétations

1.	Introduction	67
2.	Instabilité Chemoconvective	68
3.	Évolution temporelle des schémas Chemo-hydrodynamiques.....	74

4. Profil de concentration	75
5. Profil de vitesse	76
6. Effet de la gravite	78
7. Effet des concentrations initiales.....	78
7.1. Cas Acide en excès	79
7.2. Cas Base en excès	82
8. Effet de l'espace entre les deux plaques.....	84
9. Effet de la chimie	85
10. Conclusion.....	87
Références Bibliographique Du quatrième Chapitre.....	88
Conclusion générale	91
Références Bibliographique	95

Table des Figures

Chapitre N01

Figure1.1: Schéma de Cellule de Hele-Shaw	8
Figure1.2: Cellule de Hele-Shaw utilisée en microgravité (MASER 10)	8
Figure 1.3: Diffusion moléculaire	9
Figure 1.4: Modèle bidimensionnel de l'interface	12
Figure 1.5: Structures de Turing observées dans un réacteur chimique	13
Figure 1.6: (a) modèle physique de l'instabilité de (RT), (b) Instabilité de Raleigh-Taylor	15
Figure 1.7: Doigts de convection double diffusive [12]	16
Figure 1.8: Couche limite de diffusion à une interface entre deux fluides miscibles	16
Figure1.9: Instabilité en mode mixte : RT et DLC [12]	
Figure1.10: Comparaison entre les motifs formés dans une cellule Hele-Shaw verticale générés par une instabilité de Rayleigh-Taylor (RT), à double diffusion (DD) ou à convection de couche diffusive (DLC) dans les cas non réactifs (en haut) et réactifs (en bas) [10]	18

Chapitre 02

Figure 2.1: La géométrie physique considérée.	32
Figure 2.2: Schéma général du problème bidimensionnel	32
Figure 2.3: Profil de Poiseuille pour un fluide déplacé entre deux plaques	35

Chapitre N03

Figure 3.1: Maillage par éléments finis typique (Éléments, nœuds et arêtes)	47
Figure 3.2: Schéma de la configuration utilisé dans le test de validation N01	50

Figure 3.3: Fonctions de courant pour différents nombre de Rayleigh. (a) $Ra=10^3$ (b) $Ra=10^4$, (c) $Ra= 10^5$, (d) $Ra= 10^6$ (résultats de [5])	51
Figure 3.4: Fonctions de courant pour différents nombre de Rayleigh. (a) $Ra=10^3$ (b) $Ra=10^4$, (c) $Ra= 10^5$, (d) $Ra= 10^6$ (résultats obtenus par nos simulations)	51
Figure 3.5: Contours de vorticit� pour diff�rents nombre de Raleigh. (a) $Ra=10^3$ (b) $Ra=10^4$, (c) $Ra= 10^5$, (d) $Ra= 10^6$. (r�sultats de [5]) (r�sultats du Benchmark)	52
Figure 3.6: Contours de vorticit� pour diff�rents nombre de Raleigh. (a) $Ra=10^3$, (b) $Ra=10^4$, (c) $Ra= 10^5$, (d) $Ra= 10^6$. (r�sultats obtenus par nos simulations)	52
Figure 3.7: Contours de vitesse horizontale pour diff�rents nombre de Raleigh. (a) $Ra=10^3$ (b) $Ra=10^4$, (c) $Ra= 10^5$, (d) $Ra= 10^6$ (r�sultats du Benchmark [5])	53
Figure 3.8: Contours de vitesse horizontale pour diff�rents nombre de Raleigh. (a) $Ra=10^3$ (b) $Ra=10^4$, (c) $Ra= 10^5$, (d) $Ra= 10^6$ (r�sultats du Benchmark [5])	53
Figure 3.9: Sch�ma de la configuration �tudi�e	54
Figure 3.10: Instabilit� de Marangoni observ�e en cellule de Hele-Shaw en position verticale [8]	55
Figure 3.11: Fonctions de courant ($\Delta T=1.2$ K et $h=1.75$ mm)	56
Figure 3.12: Vecteurs vitesse ($\Delta T=1.2$ K et $h=1.75$ mm)	56
Figure 3.13: Profil de temp�rature ($\Delta T=1.2$ K et $h=1.75$ mm)	56
Figure 3.14: Profil de vitesse horizontale le long de la m�diane verticale et de la cavit� Comparaison entre les valeurs exp�rimentales de Didier Villers, 1989, [8]) et nos r�sultats num�riques ((a): $h=2.5$ mm, $T=0.8$, (b): $h=1.75$ mm et $T=1.2$))	58
Figure 3.15: Maillages utilis�s dans le test de sensibilit� et les diff�rents sch�mas Chemo-hydrodynamiques.	60
Figure 3.16 : Agrandissement du maillage N03 pr�s de l'interface	61
Figure 3.17: (a) Evolution temporelle du flux diffusive en un point � l'interface ($Da=1$, $C_{01}= C_{02}=1$ [mol/l]), (b) Agrandissement	61

Chapitre 04

Figure. 4.1: (a) Lignes de courant pour $Da=1$ et $C_{01}=C_{02}= 0.5$ [mol/l] � $t =2s$, (b) Fl�ches-vitesse pour $Da=1$ et $C_{01}=C_{02}=1$ [mol/l]	70
---	-----------

Figure 4.2: (a) Instabilité Chemoconvective dans la cellule de Hele-Shaw, (b) Zones de stratification instable de la densité totale ρ (y) à $t=2s$, $Da=1$ et $C_{01}=C_{02}=1$ [mol/l]	70
Figure 4.3: Evolution temporelle de la concentration d'acide à un point dans la Phase Inferieure distant de 6mm de l'interface	71
Figure 4.4: Evolution temporelle de la concentration d'acide à l'interface	71
Figure 4.5: Evolution temporelle de l'amplitude du flux diffusive de l'acide	72
Figure 4.6: Niveaux thermique dans la cellule de Hele Shaw à $t=2s$ ($Da=1$, $C_{01}/C_{02}=1$)	72
Figure 4.7: Evolution de la température avec le temps en deux points: un point à l'interface (0.071, 0.071) et à un point dans la phase inferieure (0.071, 0.055) distant de 16mm de l'interface pour ($Da=1$, et $C_{01}=C_{02}=1$ mol/l)	73
Figure 4.8: Concentration de l'Acide dans la cellule à $t=2s$, ($Da=1$, $C_{01}=C_{02}=0.25$)	73
Figure 4.9: Evolution temporelle des lignes de courant pour $Da=1$ et $C_{01}=C_{02}=1$ [mol/l]	74
Figure 4.10: Evolution temporelle de la concentration d'acide en trois points de la cellule	75
Figure 4.11: Position des trois points (choisis dans la Figure 4.10) par rapport à l'interface	76
Figure 4.12: Concentration de la base dans la cellule à $t=2s$, ($Da=1$, $C_{02}=C_{01}=1$ [mol/l])	76
Figure 4.13: (a) Evolution temporelle de la vitesse [$\mu m/s$]en trois points sous l'interface dans la phase inferieure ($Da=1$, $C_{01}=C_{02}=1$ [mol/l]) (b) agrandissement	77
Figure 4.14: Lignes de courant pour $Da=1$, $C_{01}=C_{02}=1$ [mol/l] et $g=0$	78
Figure 4.15: Lignes de courant pour différent rapport de concentration ($Da=1$)	81
Figure 4.16: Avancement des doigts de convection dans la phase aqueuse (en mm) en fonction du rapport des Concentrations initiales Acide/base	81
Figure 4.17: Modèles Chemo Convectifs formés dans la cellule pour différents rapports C_{02}/C_{01} , ($Da=1$)	83
Figure 4.18: Variation de la vitesse maximale en [m/s] à un point distant de 6 mm sous l'interface à $t=2s$	84
Figure 4.19: Motifs Chemo Convectifs formés dans la cellule pour différentes	85

valeurs de "d"

Figure 4.20: Avancement des doigts de convection en fonction du nombre de Damköhler **86**

Figure 4.21: Variation de la vitesse en un point distant de 6mm de l'interface en fonction du nombre de Damköler **87**

Liste des tableaux

Tableau 3.1: Différents maillages utilisés en test de sensibilité

59

Liste des Symboles

A	Acide
B	Base
C_{01}	Concentration initiale de la base
C_{02}	Concentration initiale d'acide
C_1	Concentration de la base
C_2	Concentration d'Acide
C_p	La chaleur spécifique à pression constante
d	Espace entre les deux plaques la cellule
D_2	Diffusivité moléculaire de l'acide dans la phase organique
D_{21}	Diffusivité moléculaire de l'acide dans la phase aqueuse
g	Accélération de la pesanteur
H	Hauteur de la cellule
k	La conductivité thermique
k_c	Constante de réaction
L	Largeur de la cellule
P	La pression
Q	La Chaleur dégagée de la réaction
R_i	taux de réaction de l'espèce i
S	Sel
t	temps
T	La température
T_{ref}	La température de référence
x	Coordonnée horizontale

y	Coordonnée verticale
z	Coordonnée selon l'épaisseur de la cellule
U	La vitesse moyenne
U_x	La composante horizontale de la vitesse
U_y	La composante verticale de la vitesse
U_z	La composante selon (OZ) de la vitesse
U_{\max}	La vitesse Maximale

Lettres grecques

α	Diffusivité thermique
β_c	Coefficient d'expansion volumique solutale
β_T	Coefficient d'expansion thermique
ρ_0	La densité à la température de référence
ρ_1	Densité de la base
ρ_2	Densité d'Acide
μ_1	Viscosité dynamique de la base
μ_2	Viscosité dynamique d'acide
ϑ	Viscosité cinématique
σ	Tension superficielle
τ_c	Temps caractéristique chimique
τ_h	Temps caractéristique hydrodynamique
ΔT	différence de température

Abréviations

CFD	Computational Fluid Dynamics
DD	Instabilité de la double Diffusion

DLC Convection de la couche diffusive

EDO Equation différentielle ordinaire

EDP Equation différentielle partielle

RT Rayleigh Taylor

Indices

0 : état initial

1 : phase inférieure (Base)

2 : phase supérieure (Acide)

Nombres Adimensionnels

Da : Nombre de Damköler ; $Da = \frac{d^2 k_c C_0}{D_{21}}$

Le : Nombre de Lewis ; $Le = \alpha_1 / D_{21}$

Ma : Nombre de Marangoni ; $Ma = \frac{\partial \sigma}{\partial T} \frac{L \Delta T}{\alpha \mu}$

Ra_t : Nombre de Rayleigh ; $Ra_t = g \beta_{t1} |Q| C_0 d^2 / (\vartheta_1 k_1)$

Ra₁ : Nombre de Rayleigh solutal de la phase aqueuse ; $Ra_1 = g \beta_{c1} |Q| C_0 d^2 / (\vartheta_1 k_1)$

Ra₂ : Nombre de Rayleigh solutal de la phase organique ; $Ra_2 = g \beta_{c2} |Q| C_0 d^2 / (\vartheta_1 k_1)$

Sc : Nombre de Schmidt ; $Sc = \vartheta_1 / D_{21}$

Introduction Générale

Introduction générale

1. Contexte de l'étude

Ce présent manuscrit décrit le travail réalisé pendant ces années de doctorat au Département de Génie Mécanique, Université de Constantine¹. Son sujet porte sur les écoulements Chemo convectifs qui se produisent quand deux réactifs sont mis en contact dans un réacteur type cellule de Hele Shaw, sous l'effet de la gravité.

La connaissance des conditions d'apparition des instabilités dans les systèmes réactifs liquide-liquide présente des intérêts tant du point de vue fondamental qu'appliqué. Ce sujet est très vaste, en effet des flux de fluides réactifs sont rencontrés dans de nombreuses applications, allant des mouvements convectifs dans les étoiles ou à l'intérieur des planètes à la chimie atmosphérique, les applications d'ingénierie comme la combustion, la prolifération de bactéries dans les courants océaniques, et beaucoup plus. Cet intérêt découle à la fois de l'impact important de la réaction sur le taux de transfert de masse et aussi du fait que le couplage de la cinétique chimique avec d'autres processus de transports produit souvent des modèles loin d'être entièrement compris.

Les propriétés des fluides tels que la densité, la viscosité, ou la tension superficielle, varient généralement lorsque des changements dans la composition ou dans la température sont induits par les réactions chimiques. Ces changements dans les propriétés des fluides, peuvent entraîner des instabilités hydrodynamiques, qui présentent une grande variété de modèles de convection, tels que les structures régulières de convection sous forme de doigts, des rouleaux ou des cellules, des turbulences et des vagues interfaciales.

Des expériences sur les systèmes liquide-liquide présentant des turbulences à l'interface avec des réactions de différents types ont été rapportées dans la littérature. Mais les expériences sont insuffisantes pour obtenir une description fine de tous les phénomènes physiques ou chimiques mis en jeu. Il est pratiquement impossible de contrôler tous les paramètres expérimentaux ou de les faire varier sur une gamme aussi large qu'on le souhaiterait. Les comparaisons entre expérience et théorie peuvent être ardues, soit parce

que l'observation expérimentale est difficile, soit parce que les modèles théoriques restent trop simples. Les prédictions théoriques sont souvent difficiles à valider expérimentalement lorsqu'elles utilisent des systèmes modèles trop éloignés de la réalité expérimentale. Pour cette raison, les simulations numériques sont un outil indispensable aux physiciens et ingénieurs, car elles se présentent comme une autre solution pour valider les modèles issus de la théorie ou pour en proposer d'autres.

2. Travail présenté

2.1. But de l'étude

L'objectif de notre travail est de présenter un modèle visant à reproduire adéquatement les interactions entre les instabilités hydrodynamiques et la chimie afin d'obtenir une compréhension plus approfondie de ces phénomènes. Ceci ne sera possible que par une analyse quantitative donnant des descriptions généralisables sur ce phénomène en quantifiant tout les paramètres le caractérisant et une analyse qualitative donnant accès à une compréhension plus approfondie ce qui permet la compréhension du phénomène dans ses aspects généraux et spécifiques.

Nous allons donc mettre en évidence les mécanismes physiques qui décrivent et étudient tout les paramètres caractérisant les différents schémas Chemo-hydrodynamiques qui peuvent se former dans un système à deux couches liquide, immiscibles, superposées dans une cellule de Hele Shaw disposée dans le plan vertical, dans le champ de la gravité. Chaque fluide contient séparément un réactif d'une réaction de neutralisation exothermique. Nous allons dans ce travail vérifier le rôle du rapport des concentrations initiales acide/base, l'effet de l'espace entre les deux plaques de la cellule, l'effet de la gravité ainsi que l'effet de la chimie sur la structure de l'écoulement produit dans la cellule et sur l'avancement du front de réaction sans oublier la détection des profils de vitesse, de concentration et de température.

2.2. Contenu de la thèse

Le manuscrit de cette thèse est constitué de quatre chapitres :

Dans le premier chapitre, on introduit la théorie des instabilités et l'hydrodynamique des écoulements réactifs liquide-liquide immiscibles en cellule de Hele Shaw. Nous avons jugé

nécessaire de rappeler quelques définitions pour la bonne compréhension du thème étudié aussi on présentera une revue de la littérature afin d'orienter notre recherche vers des aspects non encore ou moins abordés par la littérature. Cette revue porte sur certains travaux de recherche antérieurs mettant en évidence ce type d'instabilité dans des systèmes à deux phases liquide. Les comportements décrits dans cette revue sont similaires à ceux que nous avons observés au cours de nos simulations.

Les outils et méthodes de calcul, ainsi que les différentes formulations utilisées dans ce travail de thèse feront l'objet du **deuxième chapitre**. Nous présenterons les équations du problème physique ainsi que le calcul du champ de base.

Dans le troisième chapitre, on présente la méthode des éléments finis et l'approche numérique proposée est validée. La vérification se fait grâce à une comparaison entre des résultats puisés de la littérature et des résultats avec le logiciel Comsol MultiPhysics.

Le quatrième chapitre de ce manuscrit est consacré à l'étude du couplage réaction et instabilités hydrodynamiques en cellule de Hele Shaw. Nous nous sommes appuyés sur des simulations numériques permettant la détermination du champ de vitesse, le calcul du champ de concentration et du champ thermique au sein du système réactif liquide-liquide immiscibles.

Finalement, on clôtura avec **une conclusion générale** qui viendra résumer l'ensemble des observations de cette thèse et nos recommandations pour des recherches futures.

Synthèse bibliographique

Résumé

Dans ce premier chapitre nous rappelons quelques concepts et aspects fondamentaux d'hydrodynamique utiles pour la bonne compréhension de ce manuscrit, aussi nous présentons une revue des travaux concernant les instabilités survenant dans les systèmes liquide-liquide réactifs et non réactifs, sous l'effet de la gravité et cela afin d'orienter le lecteur vers l'aspect général de la recherche effectuée.

Chapitre N01 : Synthèse Bibliographique

1. Introduction

Depuis plus d'un siècle, les instabilités hydrodynamiques se révèlent un champ d'étude foisonnant et constamment renouvelé [1]. Elles représentent un sujet varié et complexe et occupent une place de choix en mécanique des fluides, étant à l'origine d'un grand nombre de phénomènes se développant aussi bien à l'échelle planétaire que cellulaire.

Ces dernières décennies, on a apporté beaucoup d'importance aux problèmes couplant les phénomènes chimiques, diffusifs et hydrodynamiques. Les instabilités hydrodynamiques survenant aux interfaces entre deux liquides non miscibles sont couramment rencontrés dans des applications telles que le traitement du pétrole, la combustion, la séparation du minerai...etc. Dans de nombreux cas, ces processus s'accompagnent de réactions chimiques exothermiques et/ou endothermiques, ayant lieu soit à l'interface ou au sein de l'une des deux phases. Dans une telle situation, les interactions entre le transfert de chaleur et le transfert de masse, d'une part, et entre la réaction elle-même et la diffusion des réactifs, d'autre part, sont inévitables. Tout cela peut provoquer la formation de structures dissipatives qui incarnent tous les phénomènes de transport de manière naturelle.

L'étude de la formation de motifs dans des systèmes réactifs à deux couches de fluides immiscibles dans le champ de la gravité, est très intéressante. En effet, les systèmes à deux couches liquides superposées présentent une variété de phénomènes convectifs inaccessibles dans le système traditionnel où la couche supérieure est un gaz, tels que les oscillations temporelles et le chaos, modèles de Turing stationnaires spatiaux, propagation de fronts ou trains de vagues. La génération spontanée des flux convectifs à l'interface est d'une importance pratique car elle conduit à des mécanismes de transfert de masse d'une phase à l'autre beaucoup plus efficaces que la diffusion moléculaire ce qui modifie radicalement les motifs de convection formés dans le système [2].

2. Définitions

2.1. Cellule de Hele-Shaw

Une cellule de Hele-Shaw est un réacteur formé de deux plaques de verre ou de plexiglas parallèles séparées par un faible interstice de l'ordre du millimètre. L'utilisation de ce réacteur permet l'étude de structures quasi-bidimensionnelles dont la caractérisation est plus aisée. En effet, elle permet une visualisation facile au travers des plaques et, elle peut également servir de modèle de milieu poreux dans certaines limites [3].

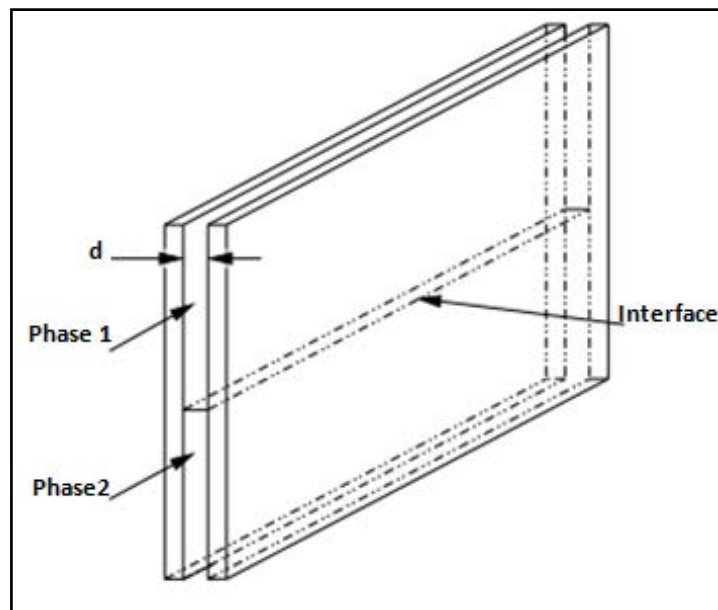


Figure 1.1: Schéma de Cellule de Hele-Shaw

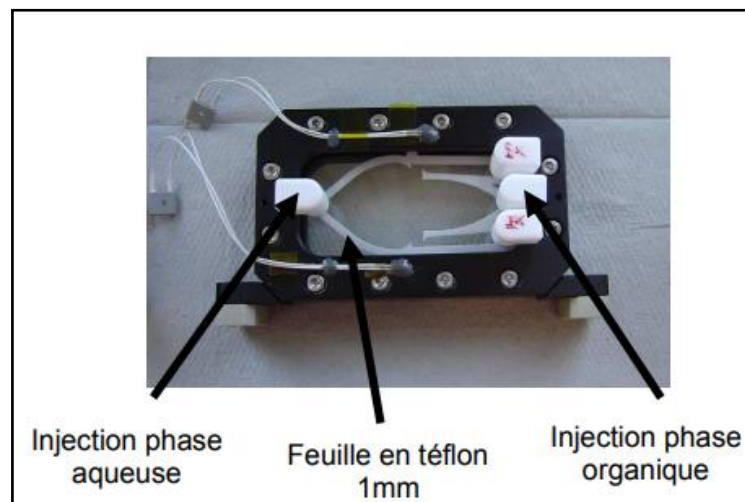


Figure 1.2: Cellule de Hele-Shaw utilisée en microgravité (MASER 10) [4]

2.2. Miscibilité et immiscibilité

La miscibilité désigne usuellement la capacité de divers liquides à former un mélange homogène. Les liquides sont dits non-miscibles s'ils ne peuvent pas se mélanger et forment un mélange hétérogène: on observe alors plusieurs phases. Le liquide de densité plus faible sera alors placé au-dessus de l'autre. En théorie l'immiscibilité n'est jamais complète (chacun des deux partenaires peut dissoudre une petite fraction de l'autre) mais elle peut l'être presque (quand les fractions dissoutes ne peuvent être qu'extrêmement petites).

2.3. Émulsion

Les émulsions sont des mélanges hétérogènes dans lesquels un liquide est dispersé sous forme de gouttelettes dans un autre liquide avec lequel il est non miscible.

2.4. Advection

L'advection est le transport d'une quantité d'un élément donné par le mouvement du milieu environnant. C'est une notion courante en mécanique des fluides car toutes les caractéristiques d'une particule fluide sont advectées lors de son déplacement au sein de l'écoulement.

2.5. Diffusion

La diffusion est un phénomène de transport irréversible qui tend à homogénéiser la composition du milieu. Dans le cas d'un mélange binaire et en l'absence des gradients de température et de pression, la diffusion se fait des régions de plus forte concentration vers les régions de concentration moindre. Elle se diffère de l'advection parce qu'elle est un processus aléatoire dans la nature (ne suit pas nécessairement une particule fluide).

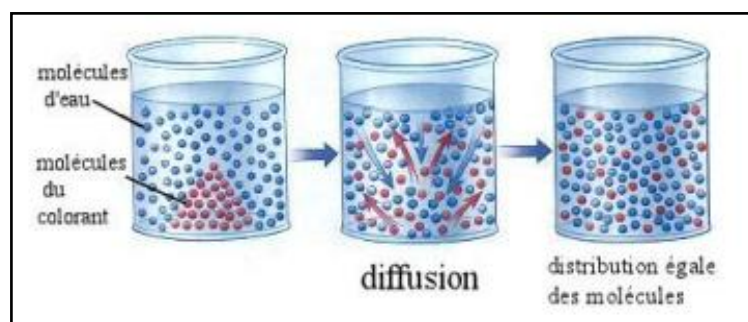


Figure 1.3: Diffusion moléculaire

2.6. Réaction chimique

Une réaction chimique est une transformation de la matière au cours de laquelle les espèces chimiques qui constituent la matière sont modifiées : les espèces qui sont consommées sont appelées réactifs. Les espèces formées au cours de la réaction sont appelées produits de réaction. Une réaction peut dégager de l'énergie, elle est alors une réaction exothermique. Elle peut nécessiter un apport d'énergie, elle est alors une réaction endothermique.

2.7. Réaction de neutralisation

La neutralisation est une réaction chimique où un acide réagit avec une base de façon à former de l'eau et un sel.

2.8. Réaction liquide-liquide

Il s'agit là de réactions mettant en jeu deux phases liquides immiscibles, qui sont souvent limitées par le transfert d'un réactif d'une phase vers l'autre où il doit réagir.

2.9. Vitesse (taux) de réaction

La vitesse d'une réaction est la vitesse à laquelle une réaction chimique se produit. Si une réaction a un faible taux, cela signifie que les molécules se combinent à une vitesse plus lente qu'une réaction avec un taux élevé. Les réactions se produisent mais pas toujours à la même vitesse. Le taux de réaction dépend des paramètres suivants :

2.9.1. La température

Lorsqu'on augmente la température d'un système, les molécules s'agiteront beaucoup plus. Ils ont plus d'énergie et ils seront plus susceptibles d'entrer en collision. Lorsqu'on abaisse la température, les molécules seront plus lentes et entreront en collision moins. Cette baisse de température abaisse la vitesse de la réaction. Aux laboratoires on mélange des solutions dans de la glace afin que la température du système reste froide et que la vitesse de réaction soit plus lente.

2.9.2. La concentration

S'il y a plus d'une substance dans un système, il y a plus de chances que les molécules entrent en collision et accélèrent la vitesse de la réaction. S'il y'en a moins, il y aura moins de collisions et la réaction se produira probablement à une vitesse plus lente. Aux laboratoires, on ajoute une solution à une autre. Lorsqu'on veut que la vitesse de réaction soit plus lente, on n'ajoutera que quelques gouttes à la fois au lieu du bécher entier.

2.9.3. La pression

Lorsqu'on augmente la pression, les molécules ont moins d'espace dans lequel elles peuvent se déplacer. Cette grande densité de molécules augmente le nombre de collisions. Lorsqu'on diminue la pression, les molécules ne se heurtent pas aussi souvent et la vitesse de réaction diminue.

2.10. Concept d'interface

Dans le cas de fluides immiscibles, la zone de séparation se réduit à une zone de très faible épaisseur, de l'ordre de l'échelle de l'atome. Cette épaisseur est largement négligeable, d'autant plus que l'on travaille sous l'hypothèse de la particule fluide. La zone de séparation se résume alors à une surface à travers laquelle les propriétés des fluides changent brutalement. Mathématiquement, on appelle cette surface de séparation une interface. Pour un espace d'étude de dimension $n+1$, une interface est un objet de dimension n qui délimite l'espace en un nombre fini de sous-espaces. En utilisant ce concept d'interface, il nous est plus aisé d'exprimer les variations qui existent dans la zone de séparation entre deux fluides sous la forme de conditions de saut.

2.11. Interface Liquide-Liquide

Lorsque deux liquides non miscibles ou partiellement miscibles sont mis en contact, une interface est formée entre les deux phases distinctes. Une telle interface peut facilement être visualisée comme un plan bidimensionnel comme suggéré par Gibbs (1928) [5] (Figure 1.4). Mais ce modèle rencontre des difficultés lorsque les conditions d'équilibre à l'interface sont considérées. Par exemple, lorsque les phases A et B sont en équilibre, la concentration de B à l'interface est supposée équivalente à la concentration de saturation de B dans A. Aussi, la concentration de A à l'interface est considérée comme équivalente à

la concentration de saturation de A en B. Ceci n'est pas cohérent avec le modèle bidimensionnel, dans lequel l'interface n'a qu'une seule concentration; soit la concentration de saturation de A en B soit la concentration de saturation de B dans A [5].

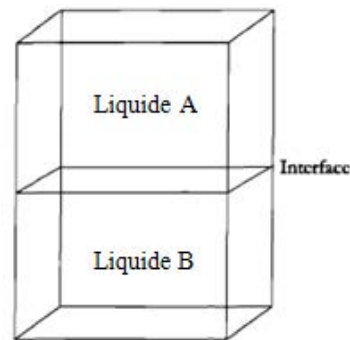


Figure 1.4: Modèle bidimensionnel de l'interface [5]

2.12. Effet Soret et effet Dufour [6]

Le comportement d'un fluide multi-constituant se caractérise par de nombreux phénomènes n'ayant pas cours dans un fluide pur. En particulier, lorsqu'un mélange de fluide binaire, initialement homogène, est soumis à un gradient de température, on observe une migration relative des constituants les uns par rapport aux autres, selon les espèces et les conditions thermodynamiques, cette migration partielle s'effectue vers les zones chaudes ou froides. Le phénomène de l'apparition du gradient de concentration dû au gradient de température, est connu sous le nom de l'effet Soret. Le flux de chaleur induit par un gradient de concentration est connu sous le nom de l'effet Dufour.

2.13. Instabilité hydrodynamique

Les instabilités hydrodynamiques sont des phénomènes physiques qui se développent dans les fluides et provoquent une évolution instable de perturbations à ces fluides. Dans la plupart des écoulements fluides, une légère variation d'une des variables hydrodynamiques de l'écoulement s'amortit. Mais il existe des écoulements instables, dans lesquels la moindre perturbation s'amplifie au cours du temps. Ce phénomène de croissance de l'amplitude d'une perturbation d'un écoulement fluide est appelé instabilité hydrodynamique.

2.14. Instabilité de Rayleigh-Bénard

L'instabilité de Rayleigh-Bénard, ou convection naturelle est une instabilité thermoconvective susceptible de se développer dans un milieu fluide soumis à un gradient de température déstabilisant. Elle se traduit par la formation de structures convectives appelées cellules de Bénard. Ce problème a été étudié expérimentalement par Bénard et théoriquement par Rayleigh.

2.15. Notion de tension de surface

La tension de surface est la tension qui existe à la surface de séparation de deux phases. On la définit comme la force qu'il faut appliquer à l'unité de longueur le long d'une ligne perpendiculaire à la surface d'un liquide en équilibre pour provoquer l'extension de cette surface, ou comme le travail exercé par cette force par unité de surface.

2.16. Structures de réaction-diffusion (ou Modèles de Turing)

Le modèle proposé par Turing [7] est un exemple typique de système de réaction-diffusion. Turing explique la formation de structures, appelée aujourd'hui structures de Turing, par la conjonction de réactions locales et de la diffusion moléculaire. Bien que la diffusion tende à lisser les différences de concentrations, le couplage avec des réactions entre une espèce qui active sa propre production et la production d'une espèce inhibitrice, ajouté à une différence suffisante entre les coefficients de diffusion, peut conduire à l'apparition spontanée de motifs périodiques (bandes ou taches) dans un milieu initialement homogène. Ce mécanisme très simple de formation de motifs est devenu un modèle emblématique, invoqué pour expliquer de nombreuses structures naturelles, en particulier vivantes.

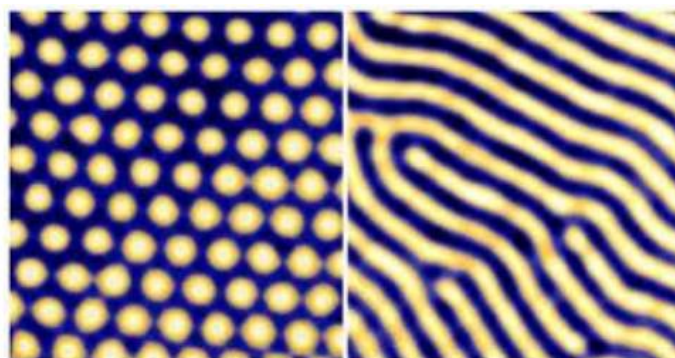


Figure 1.5: Structures de Turing observées dans un réacteur chimique [7]

2.17. Système à réaction-diffusion

La réaction-diffusion est un phénomène générique qui repose sur la présence simultanée d'une transformation locale et d'une dispersion spatiale au sein du milieu.

Un système à réaction-diffusion est un modèle mathématique qui décrit l'évolution des concentrations d'une ou plusieurs substances spatialement distribuées et soumises à deux processus : un processus de réactions chimiques locales, dans lequel les différentes substances se transforment, et un processus de diffusion qui provoque une répartition de ces substances dans l'espace.

3. Phénoménologie des Instabilités dans les Systèmes à deux couches de fluide Immiscibles Superposées

Les systèmes à deux couches de fluide immiscibles peuvent être déstabilisés par des gradients de viscosité ou de densité. Dans ce présent travail, nous nous focalisons sur les instabilités hydrodynamiques **induites par la flottabilité** (gradients de densité), qui se produisent dans de tels systèmes. Différents modèles Chemo-hydrodynamiques convectifs peuvent se produire à la fois dans les couches supérieures et inférieures. Nous allons étudier les systèmes à deux liquides immiscibles avec une solution d'un scalaire A (acide) superposant une solution de B (base) dans le champ de gravité. Il a été démontré [8], qu'une réaction aussi simple que : $A+B \rightarrow S$, (S : sel), peut avoir un impact important sur les instabilités, induites par la flottabilité, dans un système à deux solutions réactives. En effet ces réactions peuvent déclencher des instabilités et aussi briser la symétrie des structures convectives et des instabilités produites [9].

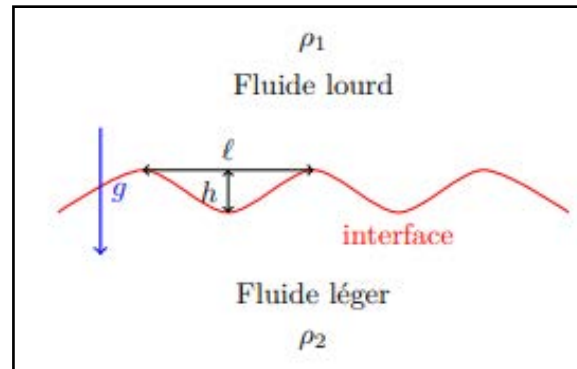
Nous sommes en présence de deux situations: systèmes non réactif et systèmes réactif. Diverses instabilités hydrodynamiques peuvent avoir un impact sur une telle stratification de fluides non miscibles.

3.1. Systèmes non réactifs

3.1.1. Instabilité de Rayleigh-Taylor (RT)

Cette instabilité se produit lorsque la solution de A (plus dense) surplombe la solution de B (moins dense) et toutes les deux sont soumises au champ de pesanteur [10]. L'équilibre est instable à la moindre perturbation : toute perturbation va s'amplifier et libérer de l'énergie

potentielle, le fluide le plus lourd gagnant progressivement la moitié inférieure sous forme de doigts, et le fluide léger passe au-dessus. Les motifs convectifs s'étendent donc de manière symétrique par rapport à la ligne de contact initial [9].



(a)



(b)

Figure 1.6: (a) Modèle physique de l'instabilité de (RT) [11], (b) Instabilité de Raleigh-Taylor [12]

3.1.2. La double diffusion (DD)

Le système peut également être déstabilisé si B diffuse plus vite que A, du moment que la solution de B (plus dense) est placée en dessous de la solution de A (moins dense) [9], [10]. Ceci laisse apparaître des doigts convectifs qui se développent à la fois vers le haut et vers le bas. Les instabilités liées à des phénomènes de diffusion différentielle opèrent en présence d'un gradient de densité initialement stable (densité augmentant le long du champ de gravité) pour peu que deux solutés diffusant à des vitesses différentes soient impliqués. En particulier, si le soluté présent dans la couche inférieure plus dense diffuse plus vite que celui dans la couche supérieure moins dense, de la double diffusion (DD) est observée.

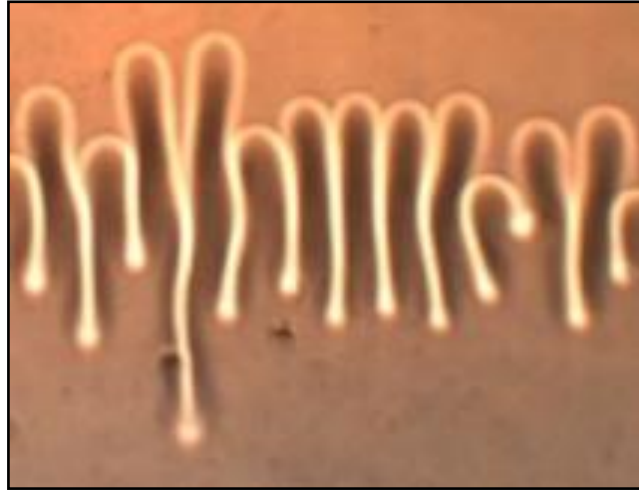


Figure 1.7: Doigts de convection double diffusive (DD) [12]

3.1.3. Convection de couche diffusive (DLC)

Cette instabilité est déclenchée quand A diffuse plus vite que B et la solution de A est moins dense que la solution de B [10], [13] et [14]. Comme conséquence de la diffusion de A, une région diluée en A apparaît au-dessus de l'interface, et en même temps une région riche en B est formée symétriquement en dessous de l'interface. De ce fait un flux convectif ascendant est généré au dessus de l'interface (plumes de convection) et des doigts de convection descendants sont formés en dessous de l'interface.

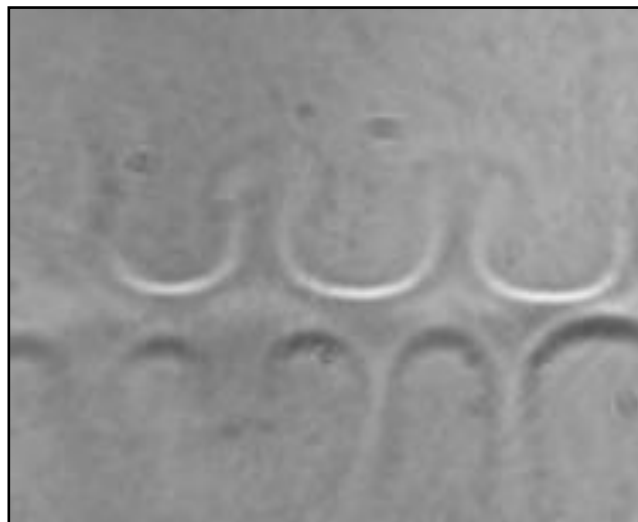


Figure 1.8: Couche de diffusion à une interface entre deux fluides miscibles [15]

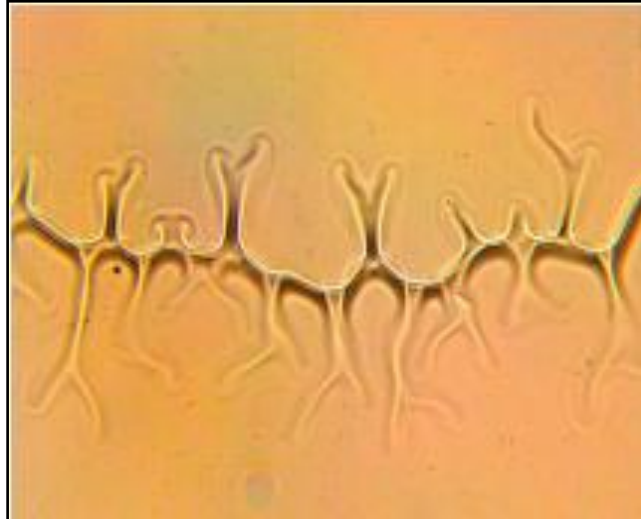


Figure1.9: Instabilité en mode mixte : RT et DLC [12]

3.2. Systèmes réactifs

3.2.1. Instabilité Chemo-Hydrodynamique

Les instabilités Chemo-hydrodynamiques apparaissent dans les systèmes hors d'équilibre lorsqu'il y'a interaction entre les réactions chimiques avec les processus de diffusion, d'advection ou de convection [2], [14].

Un grand intérêt a été consacré à l'analyse des schémas convectifs influencés ou déclenchés par des réactions simples lorsque deux solutions réactives sont mises en contact. En effet les réactions chimiques peuvent déclencher ou influencer les écoulements hydrodynamiques en modifiant la densité, la tension superficielle ou la viscosité des solutions réactives mises en contact dans le champ de la gravité. De telles instabilités existent dans les systèmes réactifs soit si deux solutions, contenant chacune un réactif, sont initialement mises en contact ou si des réactions spécifiques couplées à la diffusion génèrent des fronts chimiques auto-entretenus.

Lorsque deux solutions de composition et de densité différentes sont mises en contact l'une au-dessus de l'autre dans le champ de gravité, des instabilités hydrodynamiques induites par la flottabilité telles que l'instabilité de Rayleigh-Taylor (**RT**), de double diffusion (**DD**) ou de la Couche de diffusion (**DLC**) peuvent induire des mouvements de convection [9],[16] et [17]. Si des réactions chimiques se produisent dans de tels systèmes, soit au sein

de l'un des deux fluides, soit lorsque les deux fluides entrent en contact, dans les deux cas, ces réactions couplées à la diffusion modifient les profils de concentration et par conséquent les profils de densité à la fois dans l'espace et dans le temps [9], [18], [19]. Il en résulte une modification de motifs hydrodynamiques, en particulier si la différence de densité entre les deux solutions réactives n'est pas trop importante, les réactions chimiques induisent une asymétrie [10], [19] de motifs convectifs par rapport à la ligne de contact initial (interface) et favorisent la croissance des doigts dans une direction plutôt qu'une autre, pour les cas de **RT** et de **(DD)**. La convection **DLC** est observée seulement au dessus de la ligne de contact initiale (Figure 1.10), tandis que l'acide se diffusant vers le bas est remplacé par du sel.

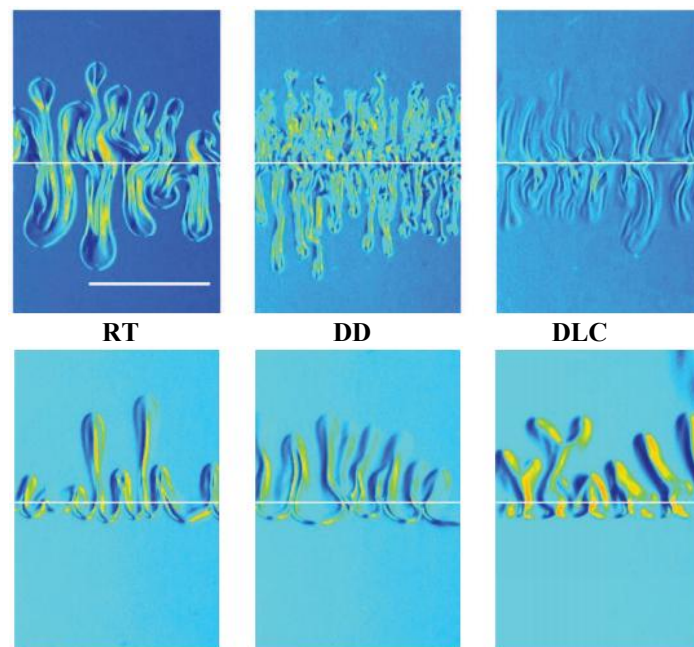


Figure 1.10 : Comparaison entre les motifs formés dans une cellule Hele-Shaw verticale générés par une instabilité de Rayleigh-Taylor (RT), à double diffusion (DD) ou à convection de couche diffusive (DLC) dans les cas non réactifs (en haut) et réactifs (en bas) [10]

4. Revue Bibliographique

La formation et l'évolution dynamique des modèles qui apparaissent lorsque les phénomènes hydrodynamiques sont mis en contribution avec les phénomènes chimiques et diffusifs, ont été l'objet de nombreuses études. Dernièrement, un nombre croissant d'œuvres a été consacré à l'étude des doigts causés par la flottabilité dans un système réactif à deux couches de fluides non miscibles.

Dans la majorité des travaux effectués dans cet axe de recherche, la réaction chimique est assumée interfaciale, c'est-à-dire qu'elle se déroule uniquement à l'interface. Mais récemment [16], il a été montré qu'il est possible que les espèces chimiques diffusent et réagissent dans la majeure partie de l'un des fluides, ce qui conduit immédiatement à un nouveau type d'instabilité engendrée par l'action conjointe d'une réaction chimique exothermique, des processus de diffusion et de la dépendance de la tension superficielle de la chaleur et des gradients de masse.

Dans cette bibliographie nous allons essayer de citer toutes les contributions expérimentales ou théoriques effectuées dans ce champ de recherche, que la réaction se déroule à l'interface ou au sein de l'une des phases.

La première description de tels phénomènes est celle de **Quincke** en 1888 [21], qui a observé la formation d'émulsion spontanée à l'interface entre une solution d'huile d'acide l'aurique et une solution aqueuse de NaOH, au cours de la réaction de neutralisation.

En 1957, **Sherwood et Wei** [24], ont observé une turbulence spontanée lors de l'extraction de l'acide acétique à partir d'un solvant organique dans une solution alcaline, ainsi que l'accélération de la réaction à l'interface par convection.

En 1959 et 1960, **Scriven et Sternling** [23] ont remarqué le déclenchement des instabilités de Marangoni dans un système liquide-liquide non miscibles le long de l'interface, où la masse d'une ou plusieurs espèces passe d'une phase à l'autre. Les champs de concentration et de température inhomogènes le long de l'interface donnent naissance au gradient de tension interfaciale ce qui déclenche l'instabilité, et ces les mêmes remarques enregistrées par **Slavtchev et Mendes** en 2004.

En 1964, **Ruckenstein et Berbente** [24], ont été les premiers à effectuer l'analyse de stabilité linéaire pour le transfert de masse, induit par une réaction chimique du premier ordre prenant place dans l'une des phases ainsi que les conditions du développement de l'instabilité interfaciale produite. Ils ont constaté qu'il n'est y'a aucun critère général qui serait similaire à celui précédemment dérivé par **Sternling et Scriven** pour un système à deux couches non réactif avec un seul soluté diffusant d'une couche à l'autre, parce que chaque type de réaction nécessite une considération séparée pour la dérivation des critères de stabilité interfaciale.

En 1969, **Berg et Morig [22]** ont prouvé expérimentalement que les gradients de densité développés lors de la diffusion d'un soluté à travers une interface liquide-liquide exercent une forte influence sur la convection générée par les variations de tension interfaciales. Les mouvements convectifs n'étaient pas localisés près de l'interface mais s'écoulaient loin de l'interface et pénétraient profondément dans les phases.

En 1973, **Steinchen et Sanfeld; Hennenberg et al. [24]** ont analysé l'effet des différents types de réactions qui se produisent uniquement à l'interface, sur la stabilité des systèmes liquide-liquide. Ils ont conclu qu'une instabilité chimique due à une réaction interfaciale peut induire une instabilité mécanique et vice-versa.

En 1978, **Dupeyrat et Nakache [3]**, ont observé de fortes déformations à l'interface en mettant en contact (dans un bécher) une solution aqueuse contenant un tensioactif cationique, le bromure d'octadécyltriméthylammonium, avec une phase organique (nitrobenzène) contenant de l'iodure de potassium et du diiode (I₂). Après la mise en contact des deux phases, l'instabilité apparaît, formant une vague autour de l'axe du bécher. Si un des composés du système n'était pas introduit au départ, aucun mouvement n'apparaît, la réaction chimique était donc responsable de l'instabilité dans ce cas.

En 1984 un exemple de plus a été donné par **Avnir et Kagan [24]**, qui ont étudié la formation de structures à l'interface liquide-gaz, induites par des réactions photochimiques.

En 1991, **Kai et al. [25]** ont étudié la dynamique des oscillations et des ondes non linéaires induites chimiquement, à une interface huile-eau dans un récipient en verre cylindrique et annulaire. Les liquides non miscibles étaient de l'eau contenant un tensioactif et le nitrobenzène contenant de l'iode. En fonction de la concentration et du rapport d'aspect du récipient, ils étudiaient la transition entre les différents types d'ondes non linéaires.

En 1992, **Thomson et al. [22]** ont observé des instabilités interfaciales au cours de l'extraction du nitrate d'uranyle à partir de la solution d'acide nitrique.

En 1996, une analyse de stabilité linéaire a été appliquée par **Mendez-Tatsis et Perez De Ortiz [26]** à un système liquide-liquide dans lequel le transfert de masse était provoqué par une réaction interfaciale réversible du pseudo-premier ordre dans certains processus d'extraction des métaux. Ils ont fait les déductions suivantes :

- Les systèmes sont instables dans le cas d'une réaction directe ou inverse.

- Les instabilités sont prévues pour les systèmes dans lesquels le réactif concerné et le produit de réaction sont adsorbés négativement, la direction instable du transfert est hors de la phase où la diffusivité des espèces concernées est plus faible.
- La longueur d'onde critique de la perturbation diminue avec l'augmentation du taux de réaction, quel que soit le rapport des viscosités.
- Les systèmes réactifs sont plus sujets à l'instabilité que les systèmes purement diffusifs.
- Les systèmes réactifs sont plus instables lorsque le transfert de masse est contrôlé par la diffusion que par des réactions instantanées.

En 1998, **Pojman et al. [27]** ont observé le phénomène de convection ainsi que la formation des doigts, lorsqu'une solution aqueuse d'acide sulfurique a été mise en contact avec une solution de sulfate de sodium. Les concentrations étaient choisies pour mettre la solution moins dense toujours en dessus. Dans ce cas, le coefficient de diffusion de l'acide sulfurique ($2.9 \times 10^{-5} [\text{cm}^2/\text{s}]$) était la cause de l'instabilité: une espèce doit avoir un coefficient de diffusion au moins trois fois plus grand que l'autre espèce. Pour un front descendant, **Pojman et al.** ont décrit une faible convection due à cette différence de coefficient de diffusion qui produit des doigts observables sur des échelles de temps de quelques minutes.

En 1999, **Eckert et Grahn [28]** ont effectué une série d'expériences sur des systèmes à deux couches liquides et de nouveaux effets ont été découverts. Ces effets surviennent quand une réaction de neutralisation exothermique interagit à l'interface liquide-liquide dans un système à deux couches placé dans une cellule Hele-Shaw. Une couche était un acide dissous dans un solvant organique; l'autre, un alcali dissous dans l'eau. Ils ont constaté qu'on peut obtenir différentes structures en faisant varier les types de réactifs et leurs concentrations.

En 2000, **Texier-Picard, Pojman et Volpert [29]**, ont mené leur recherche sur les fronts de polymérisation lors de la conversion d'un monomère liquide en polymère liquide supposés non miscibles. Ils s'intéressaient à l'étude de l'influence de la tension interfaciale sur la stabilité du système, en prenant compte de l'exothermicité de la réaction de polymérisation.

En 2000, Un autre exemple expérimental a été donné par **Pons et al [22]** qui ont fixé l'instabilité convective dans une fine couche de fluide causée par l'oxydation du glucose en acide gluconique avec du bleu de méthylène.

En 2001, **Ermakov et al. [24]** ont utilisé un système similaire à celui d'**Eckert et Grahn**, ils ont concentré leur travail sur la mesure des changements dans les lois cinétiques du transfert de masse dans le système.

En 2001, **Nepomnyashchy et Simanovskii [30]**, ont effectué une simulation numérique des régimes convectifs d'amplitude finie pour un système à deux couches liquides en considérant l'action du chauffage extérieur ainsi que des sources de chaleur externes réparties sur l'interface. Leur but était de modéliser certains aspects des réactions chimiques exothermiques qui se produisaient à l'interface.

En 2001, **Bees et al. [31]** ont effectué une série d'expériences sur l'oxydation alcaline du glucose avec du bleu de méthylène comme catalyseur, et ont prouvé l'existence d'une instabilité de renversement (overturning) induite par les réactions. De plus, ils ont développé un modèle mathématique qui décrit adéquatement ce phénomène, et ils ont effectué des analyses linéaires sur des états stables et pseudo stables afin de prédire les temps caractéristiques de longueur et de temps, de l'instabilité initiale. Leurs prédictions étaient en bon accord avec les résultats expérimentaux.

En 2003, **Fernandez et Homsy [25]** ont observé la formation de doigts visqueux dans une cellule de Hele-Shaw radiale et ont comparé les motifs formés dans les systèmes réactifs et non réactifs. Ils ont conclu que les contraintes de Marangoni sont présentes dans les systèmes réactifs.

En 2004, **Eckert et al. [21]** ont obtenu un système idéalement périodique de cellules Chemoconvectives croissant lentement loin de l'interface séparant une solution d'acide propionique et une solution aqueuse d'une base d'hydroxyde de tétraméthylammonium (TMAH).

En 2004, **D.Bratsun et De Wit [32]** ont étudié l'effet des instabilités de Marangoni sur la Chemo-convection. Ils ont fait l'analyse de stabilité linéaire et des simulations non linéaires sur le phénomène couplant une simple réaction de neutralisation exothermique et la convection purement commandée par l'effet Marangoni dans une configuration similaire

à celle analysée expérimentalement par **Eckert et al.** en négligeant la gravité. Ils ont montré que les modèles de Marangoni peuvent apparaître comme un résultat d'une interaction compliquée entre la diffusion et la réaction chimique donnant lieu à un dégagement de chaleur et à une convection à proximité de l'interface.

En 2005, **D.Bratsun et al. [33]** ont montré expérimentalement et théoriquement que la formation de motifs Chemo-hydrodynamiques dans un réacteur Hele Shaw peut être contrôlée facilement et efficacement en utilisant un refroidissement localisé externe. Ce processus de contrôle donne un brillant exemple de phénomènes coopératifs entre chimie et hydrodynamique et offre des applications technologiques prometteuses.

En 2006, **Shi et Eckert [34]** avaient observé les instabilités produites dans un système bidimensionnel contenant l'hydroxyde de tétraméthylammonium (TMAH), ainsi que l'acide propionique. Dans cette expérience, l'acide propionique, qui est un composé hydrophile est dissous dans le cyclohexane alors que l'hydroxyde de tétraméthylammonium (TMAH) est dissous dans la phase aqueuse. Ces auteurs ont utilisé une cellule de Hele-Shaw dans laquelle les deux phases organique et aqueuse ont été injectées. Dans ces conditions, l'instabilité donne lieu à des régimes différents bien définis.

En 2007, **Shi et Eckert [35]** ont étudié expérimentalement un système à deux couches de fluides immiscibles, séparées par une interface supposée plane où une réaction a eu lieu pour produire in situ un tensioactif. Elles ont identifié que la dynamique du système dépend de l'orientation de la cellule de Hele-Shaw par rapport au vecteur de gravité. Si la cellule de Hele-Shaw est placée verticalement, les cellules de Marangoni se développent dans les deux phases le long de l'interface. Cependant, si la cellule est inclinée par rapport à la verticale, les instabilités du système sont caractérisées par la déformation interfaciale à grande échelle avec une périodicité spatio-temporelle associée à la convection Chemo-Marangoni. L'objectif essentiel a été mis sur l'exploration de la transition du mode cellulaire à la déformation interfaciale à grande échelle.

En 2008, **D. Bratsun et De Wit [36]** ont concentré leur travail sur le contrôle externe de la formation de motifs dans un système à deux couches de liquides réactifs placés dans un réacteur à Hele Shaw avec des plaques ayant une conductivité élevée. Ils ont démontré que l'instabilité de Raleigh Taylor joue un rôle clé dans la formation des structures Chemo-

convectives régulières observées. Étant donné que leur méthode de contrôle économise de l'énergie, les résultats de leur travail peuvent être utiles en technologie chimique.

En 2011, **D. Bratsun et De Wit [2]** ont étudié un système à deux couches de liquide immiscibles dans une cellule de Hele Shaw orientée verticalement sous l'effet de gravité, et ils ont concentré leur recherche sur le développement de l'instabilité de Rayleigh-Taylor en fonction des différentes valeurs du taux de réaction et du rapport des concentrations initiales des réactifs.

En 2014, **D. Bratsun [22]** a étudié un système à deux couches de liquide immiscibles dans une cellule de Hele Shaw orientée verticalement sous l'effet de gravité. Son but était de se concentrer sur le rôle particulier de l'effet thermique de la réaction sur la formation des motifs convectifs. Il a démontré théoriquement que la régularité des schémas convectifs (doigts réactifs) est due à l'équilibre entre instabilité de Rayleigh-Taylor et l'instabilité de Rayleigh- Bénard.

5. Conclusion

En finalisant cette revue bibliographique, on a constaté l'importance et la modernité du sujet traité vu le nombre croissant des études effectuées dans cet axe de recherche surtout les dernières décennies. En effet les exigences industrielles allant du pétrole et du nucléaire à l'ingénierie pharmaceutique ainsi qu'à la production alimentaire et d'autres applications telles que la dynamique du manteau terrestre, les formations géologiques, la Séquestration du CO₂...etc. ont favorisé l'intérêt à l'étude de la formation des motifs dans des systèmes réactifs à deux couches de fluides non miscibles. Il est important de prendre en compte les phénomènes réactifs dans l'étude de la dynamique des systèmes liquide-liquide car ces systèmes ouvrent de plus de nombreuses perspectives sur la possibilité d'obtenir de nouveaux comportements dynamiques et de nouvelles structures spatio-temporelles complexes non encore étudiées.

Dans cette optique, nous nous sommes intéressés à l'étude numérique de l'instabilité Chemo hydrodynamique induite par la flottabilité (effet de la gravité) dans les systèmes réactifs de deux fluides immiscibles.

Références Bibliographique Du Premier Chapitre

- [1] François Charru, (2007), "Instabilités hydrodynamiques", EDP Sciences/CNRS ÉDITION.
- [2] D. Bratsun, A. De Wit, (2011), "Buoyancy-driven pattern formation in reactive immiscible two-layer systems", *Chemical Engineering Science*, 66, 5723–5734.
- [3] Anne De Wit, (2003), "Fingering of chemical fronts", Thèse présentée en vue de l'obtention du grade d'Agrégée de l'Enseignement Supérieur de la Faculté des Sciences de l'Université Libre de Bruxelles.
- [4] Rawad Tadmouri, (2010), "Tensioactifs en système biphasique eau/huile: propriétés, transfert et instabilité de Marangoni", Thèse de Doctorat, Université Toulouse III - Paul Sabatier.
- [5] Dugald Komla Agble, (1989), "Interfacial Mass Transfer in Binary Liquid-Liquid Systems With Added Surfactants", Thèse de Doctorat, Université de Londres.
- [6] Loujaine Yacine, (2015), " Étude de la séparation thermo gravitationnelle en milieu fluide ou poreux dans une enceinte soumise à des flux thermiques croisés", Thèse de Doctorat, Université Toulouse III - Paul Sabatier.
- [7] F. Sagués, Irving R. Epstein, (2003), "Nonlinear chemical dynamics", *Dalton Trans.*, pp 1201–1217.
- [8] S. Kalliadasis, J. Yang, (2004), "Fingering instabilities of exothermic reaction-diffusion fronts in porous media", *Physics of Fluids Volume 16*, Number 5.
- [9] L. Lemaigre, M. A. Budroni, L. A. Riolfo, P. Grosfils, A. De Wit, (2013), "Digitation de densité asymétrique dans les systèmes réactifs", *Non Linéaire Publications*, Avenue de l'Université, BP 12, 76801 Saint-Etienne du Rouvray cedex.
- [10] L. Lemaigre, M. A. Budroni, L. A. Riolfo, P. Grosfils, A. De Wit, (2013), "Asymmetric Rayleigh-Taylor and double-diffusive fingers in reactive systems", *Physics Of Fluids* 25, 014103.

- [11] A. Burlot, (2015), "Étude et modélisation de la turbulence homogène stratifiée instable", Thèse de Doctorat, Université de Lyon.
- [12] Shyam Sunder Gopalakrishnan, Jorge Carballido-Landeira, Anne De Wit, Bernard Knaepen, (2015), 15th European Turbulence Conference, 25-28 August, Delft, The Netherlands.
- [13] C. Almarcha, Y. R'Honi, Y. De Decker, P. M. J. Trevelyan, K. Eckert, A. De Wit, (2011), "Convective Mixing Induced by Acid Base Reactions", *The Journal of Physical Chemistry B*.
- [14] J. D'hernoncourt, A. De Wit, A. Zebib, (2007), "Double-diffusive instabilities of autocatalytic chemical fronts", *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 576, pp. 445–456.
- [15] J. Carballido-Landeira, P. M. J. Trevelyan, C. Almarcha, A. De Wit, (2013), "Mixed-mode instability of a miscible interface due to coupling between Rayleigh-Taylor and double-diffusive convective modes", *Physics Of Fluids* 25, 024107.
- [16] S. Kalliadasis, J. Yang, A. De Wit, (2004), "Fingering instabilities of exothermic reaction-diffusion fronts in porous media", *Physics of Fluids*, Vol.16, Numero 5.
- [17] D. A. Bratsun, E. V. Aitova, K. Kostarev, A. Mizev, E. A. Mosheva, (2016), "Convective Instability in a Two-Layer System of Reacting Fluids with Concentration-Dependent Diffusion", *Journal of Applied Mechanics and Technical Physics*, Vol. 57, No. 7, pp. 1226–1238.
- [18] De Wit, K. Eckert, S. A. Kalliadasis, (2012), "Introduction to the Focus Issue: Chemo-Hydrodynamic Patterns and Instabilities", *CHAOS* 22, 037101.
- [19] J. Yang, A. D'Onofrio, S. Kalliadasis, A. De Wit, (2002), "Rayleigh–Taylor instability of reaction-diffusion acidity fronts", *J. Chem. Phys.* Volume 117, Numéro 20, 9395.
- [20] C. Almarcha, P. M. J. Trevelyan, P. Grosfils, A. De Wit, (2010), "Chemically Driven Hydrodynamic Instabilities", *Physical Review Letters*, PRL 104, 044501.
- [21] E. V. Aitova, D. A. Bratsun, K. G. Kostarev, A. I. Mizev et E. A. Mosheva, (2016), "Convective Instability in a Two-Layer System of Reacting Fluids with Concentration-Dependent Diffusion", *Journal of Applied Mechanics and Technical*

- Physics, Vol. 57, No. 7, pp. 1226–1238.
- [22] D. A. Bratsun, (2014), "On Rayleigh-Benard mechanism of alignment of salt fingers in reactive immiscible two-layer systems", *Microgravity Science and Technology*, Vol. 26 No. 5, pp. 293-303.
- [23] C. V. Sternling, L. E. Scriven, (1959), " Interfacial turbulence: Hydrodynamic instability and the Marangoni effect", *American Institute of Chemical Engineers Journals*, volume 4, issue 4, pp 514-523.
- [24] D. A. Bratsun, A. De Wit, (2004), " On Marangoni convective patterns driven by an exothermic chemical reaction in two-layer systems", *Physics Of Fluids*, Vol. 16, No. 4.
- [25] S. Ying, K. Eckert, (2007), "Orientation-dependent Hydrodynamic Instabilities from Chemo-Marangoni Cells to Large Scale Interfacial Deformations", *Chinese Journal of Chemical Engineering*, 15 (5) 748.
- [26] M. A. Mendes-Tatsis, E. S. Perez De Ortiz, (1996), " Marangoni Instabilities In Systems With An Interfacial Chemical Reaction", *Chemical Engineering Science*, Vol. 51, No. 15, pp. 3755-3761.
- [27] I. R. Epstein, J. A. Pojman, (1998), "An Introduction to Nonlinear Chemical Dynamics: Oscillations, Waves, Patterns, and Chaos", Oxford University Press: New York.
- [28] K. Eckert, A. Grahn, (1999), "Plume and Finger Regimes Driven by an Exothermic Interfacial Reaction", In: *Physical Review Letters* 82, S. 4436–4439.
- [29] R. Texier-Picard, J. A. Pojman et Vit. A. Volpert, (2000), "Effect of interfacial tension on propagating polymerization fronts", *Chaos*, Volume 10, Number 1.
- [30] A. Nepomnyashchy, I. Simanovskii, L. Braverman, (2001), "Stability of thermocapillary flows with inclined temperature gradient", *Journal of fluid mechanics*, Volume 442, pp 141-155.
- [31] M. A. Bees, A. J. Pons, P. G. Sørensen, F. Sagués, (2001), "Chemoconvection: A chemically driven hydrodynamic instability", *Journal Of Chemical Physics*, Volume 114, Numero 4.

- [32] D. A. Bratsun, A. De Wit, (2004), "On Marangoni convective patterns driven by an exothermic chemical reaction in two-layer systems", *PHYSICS OF FLUIDS VOLUME 16, NUMBER 4*.
- [33] D. A. Bratsun, Y. Shi, K. Eckert et A. De Wit, (2005), "Control of chemo-hydrodynamic pattern formation by external localized cooling", *Europhys. Lett.*, 69 (5), pp. 746–752.
- [34] Y. Shi, K. Eckert, (2006), "Acceleration of reaction fronts by hydrodynamic instabilities in immiscible systems", *Chemical Engineering Science* 61, 5523 – 5533.
- [35] Y. Shi, K. Eckert, (2007), "Orientation-dependent Hydrodynamic Instabilities from Chemo-Marangoni Cells to Large Scale Interfacial Deformations", *Chinese Journal of Chemical Engineering*, 15(5), pp. 748-753.
- [36] D. A. Bratsun, A. De Wit, (2008), "Control of Chemoconvective Structures in a Slab Reactor", *Technical Physics*, Vol. 53, No. 2, pp. 146–153.

Analyse Mathématique

Résumé

La modélisation consiste à représenter la réalité physique par un système d'équations mathématiques. Ce chapitre a pour objectif la description des équations régissant la dynamique de l'écoulement réactif ainsi que l'introduction des outils de modélisation. Nous avons exposé les équations de Navier-Stokes, de l'énergie et de la diffusion-réaction et les différentes conditions aux limites et initiales associées.

Chapitre N02: Analyse Mathématique

1. Introduction

Cette thèse de doctorat a pour objectifs la modélisation, l'étude et l'examen des instabilités Chemo-hydrodynamiques et des motifs formés dans les systèmes réactifs liquide-liquide immiscibles, placés dans une cellule de Hele Shaw dans le champ de la gravité. De nombreuses études expérimentales et théoriques ont été réalisées dans le but de modéliser l'écoulement produit d'une réaction chimique entre les réactifs, cependant, la plupart des études ont été réalisées en supposant la réaction interfaciale. De plus, dans les études expérimentales menées, il est difficile d'accéder à la dynamique locale de l'écoulement. Dans ce contexte, nous souhaitons mettre en œuvre notre outil de simulation pour améliorer la compréhension des mécanismes physiques qui décrivent l'écoulement produit et qui détectent l'avancement des fronts de réaction dans la phase où la réaction est produite et cela dans des réacteurs type cellule de Hele-Shaw.

La modélisation consiste à représenter la réalité physique par un système d'équations mathématiques. Il peut s'agir de relations algébriques, d'équations différentielles ordinaires ou encore d'équations aux dérivées partielles. Les valeurs des variables de ces équations représentent alors l'état du système.

2. Description Du Problème

La recherche réalisée dans cette thèse est basée sur le travail expérimental d'Eckert et Grahn [1] et d'Eckert et al. [2] effectué dans une cellule de Hele Shaw. La Figure 2.2 illustre la géométrie du modèle 2D de hauteur H et de largeur L . Les deux plaques de la cellule sont supposées séparées par une feuille de téflon d'épaisseur d , trop petite par rapport à la largeur et la hauteur, pour cela le système peut être considéré comme quasi-bidimensionnel (Figure 2.2). La cellule est placée verticalement, de sorte que la gravité est dans son plan.

Nous considérons un système à deux couches, composé de deux phases liquide incompressibles non miscibles, séparées par une interface et confinées par deux plaques solides parallèles verticales (Figure 2.1). La phase supérieure est une solution organique,

composée d'acide propionique dissous dans l'alcool isobutylique et la phase inférieure est une solution aqueuse d'hydroxyde de sodium. Nous supposons que l'acide A diffuse à travers l'interface pour réagir avec la base B dissoute dans la couche aqueuse inférieure pour former un sel S avec la production d'eau. Une telle réaction de neutralisation peut être décrite par l'équation simplifiée [3], [4]: $A+B \rightarrow S$, où S désigne le sel. Cette réaction s'accompagne d'un dégagement de chaleur Q et supposée produite uniquement dans la phase aqueuse car la base B est non miscible dans la phase organique supérieure.

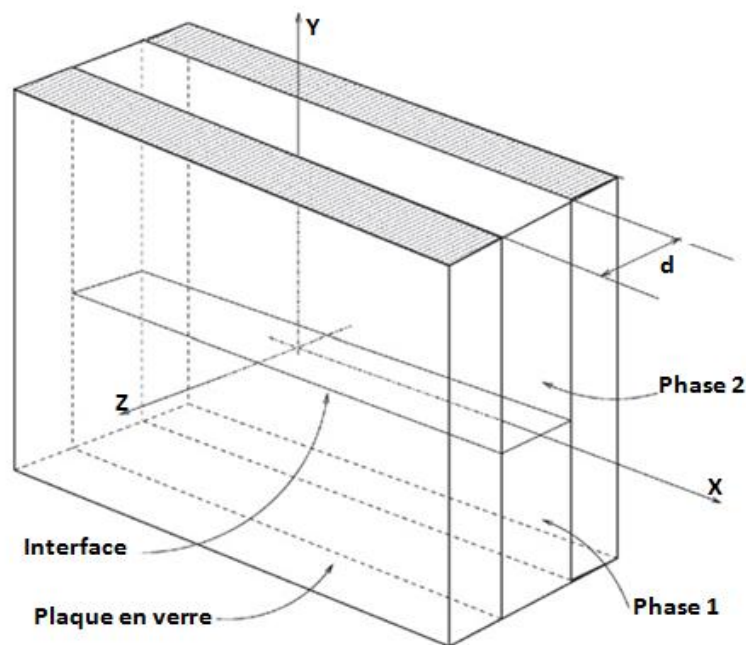


Figure 2.1: La géométrie physique considérée

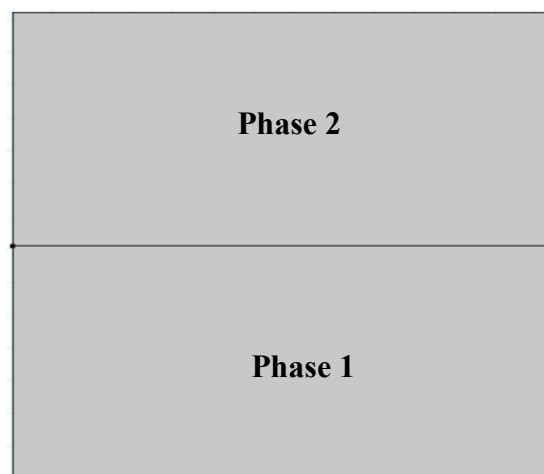


Figure 2.2: Schéma général du problème bidimensionnel

3. Hypothèses De Recherche

Un certain nombre d'hypothèses simplificatrices est utile pour la modélisation mathématique de tout problème ainsi on ne gardera de la réalité que ses caractères essentiels.

1. Les propriétés thermo physiques des fluides (1 & 2) sont constantes et sont déterminées à partir de la température de référence T_{ref} et les concentrations initiales de base et d'acide C_{01} et C_{02} respectivement.
2. La densité du fluide dans le terme des forces de volume varie linéairement avec la température T et les concentrations de base C_1 et d'acide C_2 selon l'approximation de Boussinesq. Cette variation est donnée par la relation suivante :

$$\rho_1 = \rho_{01} \left(1 - \beta_{T1}(T - T_{ref}) - \beta_{c1}(C_1 - C_{01}) \right) \quad (2.1)$$

$$\rho_2 = \rho_{02} \left(1 - \beta_{T2}(T - T_{ref}) - \beta_{c2}(C_2 - C_{02}) \right) \quad (2.2)$$

Où ρ_0 est la densité à la température et concentration de référence, les indices 1 et 2 indiquent les phases inférieure et supérieure respectivement. β_T est le coefficient d'expansion volumique thermique et β_c le coefficient d'expansion volumique solutale exprimés ci-dessous :

$$\beta_T = -\frac{1}{\rho_0} \left(\frac{\partial \rho}{\partial T} \right)_{p,c} \quad \text{et} \quad \beta_c = -\frac{1}{\rho_0} \left(\frac{\partial \rho}{\partial C} \right)_{p,T}$$

3. L'espace entre les deux plaques est très petit ($d \ll L$ & H), c'est pourquoi on considère le système comme étant bidimensionnel.
4. Les réactifs (l'acide et la base) ont le même coefficient de diffusion dans l'eau, ceci est supposé éliminer l'apparition du phénomène de la double diffusion (DD) dans la phase inférieure.
5. La diffusivité de l'acide est la même dans les deux phases : $D_2 = D_{21}$
6. La base est insoluble dans la phase organique supérieure ceci est supposé limiter l'occurrence de la réaction dans la phase inférieure.

7. L'effet Soret (la thermodiffusion) est supposé négligeable.
8. Tous les phénomènes liés à la tension superficielle sont ignorés.
9. La ligne de contact entre les deux liquides est supposée plane et indéformable.
10. Les concentrations initiales C_{02} d'acide et C_{01} de base sont égales.
11. Le sel produit de la réaction de neutralisation n'est pas pris en considération dans cette simulation.

4. Approximation de la cellule de Hele-Shaw (Flux de Hele-Shaw)

Le flux de Hele-Shaw est défini comme le flux de Stokes entre deux plaques plates parallèles séparées par un espace infiniment petit, nommé d'après Henry Selby Hele-Shaw, qui a étudié le problème en 1898 [5]. Divers problèmes en mécanique des fluides peuvent être approchés à des écoulements de Hele-Shaw, ainsi la recherche de ces écoulements est importante.

En 1898 [5], Hele-Shaw a étudié le comportement d'un fluide visqueux incompressible newtonien, lorsqu'il se déplace entre deux plaques planes. Il a exprimé la vitesse moyenne, U , de déplacement selon l'axe Oz du fluide considéré en fonction de la distance entre les deux plaques, notée « d ». Cette vitesse est exprimée par la relation suivante:

$$U = -\frac{d^2}{12\mu} \nabla(P + \rho g) \quad (2.3)$$

Avec μ la viscosité dynamique du fluide.

Cette relation a été utilisée pour identifier les lignes de courant dans des écoulements à deux dimensions. Saffman et Taylor en 1958 [5] ont été parmi les premiers, avec Wooding en 1969, à établir une analogie entre la théorie de l'écoulement dans une cellule de Hele-Shaw pour un fluide homogène et un écoulement dans un milieu poreux homogène et isotrope.

5. Analogie entre cellule de Hele-Shaw et un milieu poreux

La cellule de Hele Shaw constitue un modèle analogue à un milieu poreux bidimensionnel [1], [3], [6], [7]. Cette analogie est basée sur la possibilité d'exprimer la vitesse bidimensionnelle moyenne, à travers l'épaisseur "d" de la cellule, par la loi de Darcy.

L'analogie formelle entre une cellule de Hele Shaw et un Milieu poreux s'établit comme suivant [1], [7], [8]:

1. On suppose que dans la direction z, l'écoulement suit un profil laminaire de Poiseuille avec des conditions de non-glissement sur les parois:

$$U(z) = U_{\max} \left(1 - \frac{4z^2}{d^2}\right) \quad (2.5)$$

Tel que U_{\max} , est la vitesse maximale à $Z=0$.

La vitesse moyenne de l'écoulement est donnée par : $U = \int_{-\frac{d}{2}}^{+\frac{d}{2}} U(z) dz = \frac{2}{3} U_{\max}$.

De ce fait, l'équation (2.5) s'écrira : $U(z) = \frac{3}{2} \left(1 - \frac{4z^2}{d^2}\right) U$ (2.6)

A partir de l'équation (2.6), on écrira

$$\begin{cases} U_x(x, y, z, t) = \frac{3}{2} \left(1 - \frac{4z^2}{d^2}\right) U_x(x, y, t), \\ U_y(x, y, z, t) = \frac{3}{2} \left(1 - \frac{4z^2}{d^2}\right) U_y(x, y, t), \\ U_z(x, y, z, t) = 0. \end{cases} \quad (2.7)$$

Avec $\vec{U}(x, y, z, t)$ le champs des vitesses tridimensionnel et $\vec{U}(x, y, t)$ le champs des vitesses bidimensionnel.

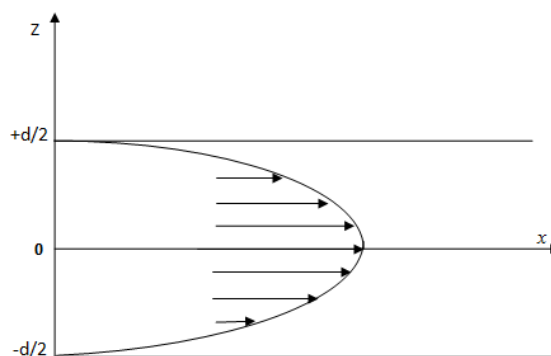


Figure 2.3: Profil de Poiseuille pour un fluide déplacé entre deux plaques

2. On moyenne l'équation de Navier-Stokes dans l'épaisseur de la cellule, on utilise un opérateur de moyenne sur l'épaisseur de l'interstice, défini comme suit [1], [7], [8]:

$$\langle \dots \rangle \equiv \frac{1}{d} \int_{-d/2}^{+d/2} dz \dots \quad (2.8)$$

L'équation de Navier Stokes pour un fluide newtonien et incompressible de viscosité μ et de densité ρ remplissant l'espace entre les deux plaques peut s'écrire comme suit :

$$\underbrace{\frac{\partial \vec{U}}{\partial t}}_1 + \underbrace{(\vec{U} \cdot \nabla) \vec{U}}_2 = - \underbrace{\frac{1}{\rho} \nabla p}_3 + \underbrace{\nu \nabla^2 \vec{U}}_4 + \underbrace{\vec{g}}_5 \quad (2.9)$$

Appliquons sur chacun des termes de l'équation de Navier-Stokes (2.9) l'opérateur (2.8):

▪ **Terme 1:** $\langle \frac{\partial \vec{U}}{\partial t} \rangle = \langle \frac{\partial U_x}{\partial t} \rangle \vec{I}_x + \langle \frac{\partial U_y}{\partial t} \rangle \vec{I}_y + \langle \frac{\partial U_z}{\partial t} \rangle \vec{I}_z$

Entre les plaques, l'écoulement est pratiquement parallèle au plan (xOy) et on a donc $U_z = 0$, d'où :

$$\langle \frac{\partial \vec{U}}{\partial t} \rangle = \frac{\partial U_x}{\partial t} \langle \frac{3}{2} (1 - \frac{4z^2}{d^2}) \rangle \vec{I}_x + \frac{\partial U_y}{\partial t} \langle \frac{3}{2} (1 - \frac{4z^2}{d^2}) \rangle \vec{I}_y + 0 \vec{I}_z$$

Nous avons $\langle \frac{3}{2} (1 - \frac{4z^2}{d^2}) \rangle = \int_{-d/2}^{+d/2} (\frac{3}{2} (1 - \frac{4z^2}{d^2})) dz = 1$

Alors $\boxed{\langle \frac{\partial \vec{U}}{\partial t} \rangle = \frac{\partial U_x}{\partial t} \vec{I}_x + \frac{\partial U_y}{\partial t} \vec{I}_y = \frac{\partial \vec{U}}{\partial t}}$

▪ **Terme 2 :** $\langle \nu \nabla^2 \vec{U} \rangle = \nu \langle \nabla^2 U_x \rangle \vec{I}_x + \langle \nabla^2 U_y \rangle \vec{I}_y + \langle \nabla^2 U_z \rangle \vec{I}_z$

$$\langle \nu \nabla^2 \vec{U} \rangle = \nu \langle \nabla^2 U_x \rangle \frac{3}{2} (1 - \frac{4z^2}{d^2}) \vec{I}_x + \langle \nabla^2 U_y \rangle \frac{3}{2} (1 - \frac{4z^2}{d^2}) \vec{I}_y + 0$$

$$\langle \nu \nabla^2 \vec{U} \rangle = \nu \left(\langle \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) U_x \rangle \frac{3}{2} (1 - \frac{4z^2}{d^2}) \vec{I}_x + \langle \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) U_y \rangle \frac{3}{2} (1 - \frac{4z^2}{d^2}) \vec{I}_y + 0 \right)$$

D'où $\boxed{\langle \nu \nabla^2 \vec{U} \rangle = \nu \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) \vec{U} - \frac{12\nu}{d^2} \vec{U}}$

▪ **Terme 3 :** $\langle (\vec{U} \cdot \vec{\nabla}) \vec{U} \rangle = \langle \left(U_x \frac{\partial U_x}{\partial x} + U_y \frac{\partial U_y}{\partial y} + U_z \frac{\partial U_z}{\partial z} \right) \rangle$

$$\langle (\vec{U} \cdot \vec{\nabla}) \vec{U} \rangle = \left\langle \left(U_x \frac{\partial U_x}{\partial x} \left(\frac{3}{2} \left(1 - \frac{4z^2}{d^2} \right) \right)^2 + U_y \frac{\partial U_y}{\partial y} \left(\frac{3}{2} \left(1 - \frac{4z^2}{d^2} \right) \right)^2 + U_z \frac{\partial U_z}{\partial z} \left(\frac{3}{2} \left(1 - \frac{4z^2}{d^2} \right) \right)^2 \right) \right\rangle$$

$$\langle (\vec{U} \cdot \vec{\nabla}) \vec{U} \rangle = \left(U_x \frac{\partial U_x}{\partial x} + U_y \frac{\partial U_y}{\partial y} \right) \int_{-\frac{d}{2}}^{+\frac{d}{2}} \left(\frac{3}{2} \left(1 - \frac{4z^2}{d^2} \right) \right)^2 dz$$

Nous avons $\int_{-\frac{d}{2}}^{+\frac{d}{2}} \left(\frac{3}{2} \left(1 - \frac{4z^2}{d^2} \right) \right)^2 dz = \frac{6}{5}$

D'où $\langle (\vec{U} \cdot \vec{\nabla}) \vec{U} \rangle = \frac{6}{5} \left(U_x \frac{\partial U_x}{\partial x} + U_y \frac{\partial U_y}{\partial y} \right)$

▪ **Terme 3 :** $\langle -\frac{1}{\rho} \vec{\nabla} p \rangle = -\frac{1}{\rho} \vec{\nabla} p$

▪ **Terme 4 :** $\langle g \rangle = g$

Dès lors, on obtient l'équation de Navier-Stokes moyennée sur l'épaisseur de la cellule de Hele-Shaw suivante :

$$\rho \frac{\partial \vec{U}}{\partial t} + \frac{6}{5} \vec{U} \cdot (\vec{U} \cdot \vec{\nabla}) = -\vec{\nabla} p + \mu \vec{\nabla}^2 \vec{U} - \frac{12\mu}{d^2} \vec{U} + \rho \vec{g} \quad (2.10)$$

Avec $\vec{\nabla} = \left(\frac{\partial}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial y} \right)$ Opérateur gradient agissant dans le plan (x, y).

Et $\vec{\nabla}^2 = \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right)$ Opérateur laplacien agissant dans le plan (x, y).

6. Mise en équations du problème

Nous introduisons les hypothèses précédentes dans les équations générales déduites des principes fondamentaux de conservation de la matière (continuité), de la quantité de mouvement, de l'énergie et de la réaction-convection- diffusion, afin d'obtenir un modèle mathématique de base pour le problème physique.

La résolution du problème traité dans ce manuscrit consiste à déterminer les champs de vitesse, de température et de concentration en chaque point du domaine occupé par les deux fluides. Pour cela, nous devons établir les équations de base régissant le problème pour chacune des deux phases.

6.1. Équation de conservation de la matière

L'équation de continuité exprime le principe de la conservation de la masse d'un fluide en mouvement. Dans un volume élémentaire, la masse du fluide prélevé ou injecté est égale à la somme de la variation de la masse du fluide durant un intervalle de temps élémentaire et des flux massiques traversant la surface de ce volume. Pour un fluide Newtonien incompressible elle est définie par :

$$\rho \nabla \cdot \vec{U} = 0$$

En coordonnées cartésiennes elle s'écrit:

$$\partial U_x / \partial x + \partial U_y / \partial y = 0 \quad (i)$$

6.2. Équation de mouvement

D'après la deuxième loi fondamentale de la dynamique, le taux temporaire de changement de la quantité de mouvement d'une particule fluide est égal à la somme des forces extérieures sur cette particule. L'équation de la dynamique s'écrit alors comme suit :

$$\rho \frac{\partial \vec{U}}{\partial t} + \frac{6}{5} \vec{U} \cdot (\vec{U} \cdot \nabla) = -\nabla p + \mu \nabla^2 \vec{U} - \frac{12\mu}{d^2} \vec{U} + \rho \vec{g} \quad (ii)$$

Où

- $\rho \frac{\partial \vec{U}}{\partial t}$: représente le taux de variation de la quantité de mouvement.
- $\frac{6}{5} \vec{U} \cdot \nabla \vec{U}$: représente le taux net de transport de quantité de mouvement.
- $\mu \nabla^2 \vec{U}$ représente les forces nettes de viscosité.
- $-\nabla p$ représente les forces de pression.
- $\rho \vec{g}$ représente la force de gravité.
- $-\frac{12\mu}{d^2} \vec{U}$ est un terme de friction qui représente la résistance de la paroi imposée par la condition de non glissement.

En coordonnées cartésiennes l'équation (ii) s'écrit :

$$\rho \frac{\partial U_x}{\partial t} + \rho \frac{6}{5} \left(U_x \frac{\partial U_x}{\partial x} + U_y \frac{\partial U_x}{\partial y} \right) = \mu \left(\frac{\partial^2 U_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 U_x}{\partial y^2} \right) - \frac{12\mu}{d^2} U_x - \frac{\partial p}{\partial x} \quad (ii.1)$$

$$\rho \frac{\partial U_y}{\partial t} + \rho \frac{6}{5} \left(U_x \frac{\partial U_y}{\partial x} + U_y \frac{\partial U_y}{\partial y} \right) = \mu \left(\frac{\partial^2 U_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 U_y}{\partial y^2} \right) - \frac{12\mu}{d^2} U_y - \frac{\partial p}{\partial y} - \rho g \quad (\text{ii.2})$$

Dans les équations ci-dessus, \vec{U} (U_x, U_y) est le vecteur de vitesse en [m/s], avec U_x la composante horizontale et U_y la composante verticale, "t" est le temps en [s], "p" est la pression en [Pa], "g" l'accélération de la pesanteur en [m/s²] et "μ" est la viscosité dynamique du fluide en [Pa.s].

6.3. Équation de l'énergie

La première loi de thermodynamique permet d'établir des relations entre les différentes formes d'énergie mises en jeu dans un système. L'équation de l'énergie, dans laquelle les termes de dissipation visqueuse sont négligés, s'écrit comme suit :

$$\rho C_p \partial T / \partial t + \rho C_p U \cdot \nabla T = \nabla \cdot (k \nabla T) + Q$$

En coordonnées cartésiennes

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} + \rho C_p \left(U_x \frac{\partial T}{\partial x} + U_y \frac{\partial T}{\partial y} \right) = k \left(\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} \right) + Q \quad (\text{iii})$$

Avec

k la conductivité thermique en [W/ (m.K)].

Q représente une source générale de chaleur en [J].

C_p la chaleur spécifique à pression constante en [J/ (kg.K)].

6.4. Équation de Réaction-Diffusion

L'équation de convection-diffusion est une combinaison des équations de diffusion et de convection (advection), et décrit les phénomènes physiques où les particules, l'énergie ou d'autres quantités physiques sont transférées à l'intérieur d'un système physique en raison de deux processus: la diffusion et la convection. Selon le contexte, la même équation peut être appelée équation advection-diffusion.

Elle est donné par: $\partial C_i / \partial t + \nabla \cdot (-D_i \nabla C_i) + U \cdot \nabla C_i = R_i$

En coordonnées cartésiennes elle s'écrit:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} - D_i \left(\frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C_i}{\partial y^2} \right) + \left(U_x \frac{\partial C_i}{\partial x} + U_y \frac{\partial C_i}{\partial y} \right) = R_i \quad (\text{iv})$$

Avec

C_i la concentration du liquide i en $[\text{mol}/\text{m}^3]$,

g est l'accélération de l'apesanteur en $[\text{m}^2/\text{s}]$,

D_i est le coefficient de diffusivité moléculaire de l'espèce i en $[\text{cm}^2/\text{s}]$,

R_i correspond au taux de réaction de l'espèce i en $[\text{mol}/(\text{m}^3 \cdot \text{s})]$.

6.5. Conditions Initiales et aux limites

Les équations de base décrites précédemment sont résolues en tenant compte des conditions aux limites spécifiques à notre problème.

6.6. Conditions Initiales

Au temps initial on considère que les deux fluides au sein de la cellule sont au repos avec une température et concentration uniforme, ce qui se traduit comme suit :

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{Pour } 0 \leq x \leq L \text{ et } 0 \leq y \leq \frac{H}{2} : C_1 = C_{01} \\ \text{Pour } 0 \leq x \leq L \text{ et } \frac{H}{2} \leq y \leq H : C_2 = C_{02} \\ \\ C_{01} = C_{02} = 0.25 \left[\frac{\text{mol}}{\text{l}} \right] \\ T_{01} = T_{02} = T_{ref} = 293.15 \text{ [K]} \end{array} \right.$$

6.7. Conditions à l'interface (pour $0 \leq x \leq L$ et $y = \frac{H}{2}$)

Dans la cellule de Hele Shaw, les écoulements dans les deux phases 1 et 2 sont couplés par des relations cinématique, dynamique, massique et thermique à l'interface. La définition de ces conditions aux limites (à l'interface), est un problème difficile et d'actualité. L'objectif de la thèse ne s'inscrit pas dans cette démarche, c'est pourquoi, et pour éviter le saut des conditions à l'interface, nous avons supposé la continuité des variables suivantes :

- Pour une interface supposée plane et non déformable nous aurons :

$$U_{y1} = U_{y2} = 0$$

- Il faut rajouter une condition cinématique de continuité des vitesses tangentielles à l'interface à cause de l'adhérence entre les deux fluides: $U_{x1} = U_{x2}$
- La tension de surface est négligée d'où les contraintes tangentielles de part et d'autre de l'interface sont égales, alors : $\mu_1 \frac{\partial U_{x1}}{\partial y} = \mu_2 \frac{\partial U_{x2}}{\partial y}$
- Aussi nous avons supposé la continuité des variables suivantes :

$$k_1 \frac{\partial T_1}{\partial y} = k_2 \frac{\partial T_2}{\partial y} ; \quad T_1 = T_2$$

$$D_2 \frac{\partial C_2}{\partial y} = D_{21} \frac{\partial C_{21}}{\partial y} ; \quad C_2 = C_{21}$$

Avec C_{21} est la concentration de l'acide dans la phase aqueuse

D_{21} est la diffusivité de l'acide dans la phase aqueuse

- La base est insoluble dans la phase organique supérieure ceci se traduit par : $\frac{\partial C_1}{\partial y} = 0$

Remarque : Les conditions de saut exposées ci-dessus donnent une relation de dépendance entre les solutions obtenues dans chaque phase. Par exemple, la solution obtenue dans la phase1 permet, grâce aux conditions de saut, d'obtenir les conditions aux limites pour la solution du problème dans la phase2 et réciproquement.

6.8. Conditions aux limites

L'imperméabilité et le non glissement des particules fluides sur les parois rigides latérales sont donnés par:

$$\text{Pour } (x = 0, x = L, y = 0 \text{ et } y = H), \text{ nous avons: } \begin{cases} \frac{\partial C_1}{\partial x} = \frac{\partial C_2}{\partial x} = \frac{\partial C_1}{\partial y} = \frac{\partial C_2}{\partial y} = 0 \\ U_x = U_y = 0 \end{cases}$$

7. Conclusion

Dans cette section nous avons apporté un aperçu général sur les techniques de modélisation de l'écoulement réactif dans une cellule de Hele Shaw et les hypothèses introduites sont précisées. Après avoir exposé les équations dynamiques, thermiques et massiques, ainsi que les conditions aux limites, et initiale associées, la recherche des solutions sera conduite selon la voie numérique, objet du troisième chapitre, qui traitera les techniques utilisées pour simuler l'instabilité induite par une réaction de neutralisation entre un acide et une base.

Références Bibliographique Du Deuxième Chapitre

- [1] K. Eckert and A. Grahn, (1999), "Plume and finger regimes driven by a exothermic interfacial reaction", *Physical Review Letters* 82, S. 4436–4439.
- [2] K. Eckert, M. Acker, Y. Shi, (2004), "Chemical pattern formation driven by a neutralization reaction. I. Mechanism and basic features", *Phys. Fluids* 16, 385.
- [3] D. Bratsun, A. De Wit, (2011), "Buoyancy-driven pattern formation in reactive immiscible two-layer systems", *Chemical Engineering Science*, 66, 5723–5734.
- [4] J. Martin, N. Rakotomalala, D. Salin, M. Böckmann, (2002), "Buoyancy-driven instability of an autocatalytic reaction front in a Hele-Shaw cell", *Physical Review E*, Volume 65, 051605.
- [5] Renaud Maes, (2009), "Etude expérimentale de la digitation visqueuse de fluides miscibles en cellule de Hele-Shaw", Thèse de Doctorat, Université Libre de Bruxelles.
- [6] Hung Truong Trieu, (2011), "Etudes théorique et expérimentale du transport de fluides miscibles en cellule Hele-Shaw", Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique De Lorraine.
- [7] Anne De Wit, (2003), "Fingering of chemical fronts", Thèse présentée en vue de l'obtention du grade d'Agrégée de l'Enseignement Supérieur de la Faculté des Sciences de l'Université Libre de Bruxelles.
- [8] Jon Mainhagu, (2009), "Transport de fluides miscibles à propriétés physiques variables en cellule Hele-Shaw. Comparaisons entre simulations numériques et mesures par LIF", Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine.

Analyse Numérique

Résumé

L'utilisation des méthodes numériques pour analyser des problèmes de la dynamique des fluides est devenue une approche par excellence. En effet, elle permet d'avoir un grand nombre d'informations dans des configurations parfois difficilement accessible expérimentalement, ainsi il serait convenable de l'utiliser pour modéliser les écoulements Chemo convectifs, d'où la procédure numérique retenue pour la résolution du système d'équations déjà exposée au chapitre 02 est présentée dans ce chapitre.

Chapitre N03: Modèle Numérique

1. Introduction

Les équations de base qui gouvernent les instabilités Chemo hydrodynamiques sont non linéaires et couplées. Généralement, elles n'admettent pas de solutions analytiques sauf pour des cas très simplifiés. Par conséquent, un recours aux méthodes numériques s'avère obligatoire.

Les méthodes numériques passent par deux étapes; une étape de maillage et une étape de discrétisation. Il existe plusieurs méthodes de discrétisation. Dans le cadre de notre étude, nous avons utilisé la méthode des éléments finies utilisée par le logiciel Comsol MultiPhysics.

2. Comsol MultiPhysics [1]

Ce logiciel a d'abord été une boîte à outils dans Matlab. Ensuite, il a été vendu séparément de Matlab sous le nom Femlab. Ce logiciel utilisait un langage de script très proche du langage de Matlab. Depuis la version 4, Comsol MultiPhysics a complètement évolué sous une nouvelle forme. Le langage de script est maintenant Java. Ce logiciel est avant tout un logiciel de résolution de système d'équations différentielles algébriques. Il présente l'avantage d'être un environnement de modélisation intégrée avec une approche semi-analytique : l'utilisation spécifique ses équations ce qui rend son utilisation très flexible.

Afin de répondre à des problèmes plus spécifiques, des modèles sont déjà construits pour étudier par exemple la mécanique des structure, la mécanique des fluides, les transferts de chaleur, l'électromagnétisme. La dernière particularité de ce logiciel est de pouvoir coupler des phénomènes physiques entre eux. Comsol MultiPhysics intègre l'ensemble des outils à la réalisation d'une simulation: le prétraitement, la résolution et le post-traitement.

- **Le prétraitement** consistera à construire la géométrie du problème considéré, indiquer les matériaux, décrire les équations, imposer les conditions aux limites et mailler le domaine.

- **La résolution** est le calcul de la solution avec le solveur intégré.
- **Le post-traitement** permet de visualiser les résultats et sauvegarder la solution.

3. Principe des éléments finis [2]

Les origines de la méthode des éléments finis remontent aux années 1950 lorsque des ingénieurs l'utilisèrent pour simuler des problèmes de mécanique des milieux continus déformables. Depuis, le champ d'application s'est considérablement étendu et les fondements théoriques de la méthode se sont amplement consolidés.

La technique des éléments finis est similaire à celle des volumes finis pour la discrétisation: maillage non structuré, avec pour volume de contrôles élémentaires des tétraèdres ou hexaèdres en 3-D. Sur chacun des volumes, on introduit une fonction de pondération, généralement, un polynôme de degré plus élevé, avant d'intégrer les équations de conservation. La solution s'obtient alors par minimisation du résidu. Parmi les avantages de cette approche, retenons l'étude des géométries très compliquées, et la formalisation permettant de développer un certain nombre de résultats mathématiques. Les matrices à traiter sont, en général, sans propriétés particulières, contrairement aux matrices obtenues avec des grilles régulières.

4. Étapes du calcul par éléments finis

Les étapes de l'étude d'un problème aux limites sont [3]:

1. Définir les nœuds et les éléments (Créer le maillage).
2. Pour chaque élément, établir la matrice de rigidité élémentaire $[ke]$ reliant les degrés de libertés (déplacements) nodaux $\{ue\}$ et les forces $\{fe\}$ appliquées aux nœuds :

$$[ke] \{ue\} = \{fe\}$$

3. Assembler les matrices et les vecteurs élémentaires en un système global $[K] \{U\} = \{F\}$ de manière à satisfaire les conditions d'équilibre aux nœuds.
4. Modifier le système global en tenant compte des conditions aux limites.
5. Résoudre le système $[K] \{U\} = \{F\}$ et obtenir les déplacements $\{U\}$ aux nœuds.

6. Calculer les gradients (flux de chaleur, déformations, déplacements et contraintes) dans les éléments et les réactions aux nœuds sur lesquels les conditions aux limites sont imposées.

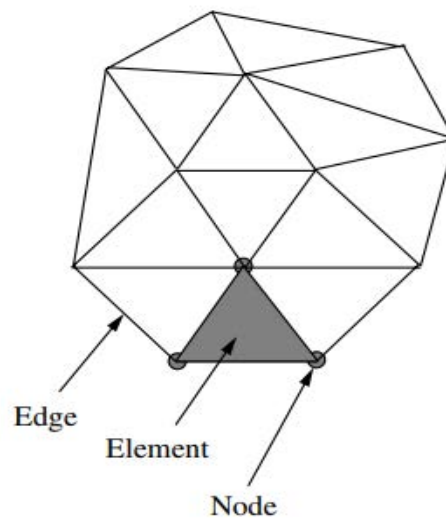


Figure 3.1: Maillage par éléments finis typique (Éléments, nœuds et arêtes)

5. Discrétisation des EDP par éléments finis

La démarche générale est la suivante [4], [5]. On a une EDP ou EDO à résoudre sur un domaine Ω . On écrit la formulation variationnelle de cette EDP ou EDO, et on se ramène donc à un problème du type,

$$(P) \begin{cases} \text{trouver } u \in V \text{ tel que} \\ a(u, v) = l(v), \quad \forall v \in \Omega \end{cases}$$

On va chercher une approximation de u par approximation interne. Pour cela, on définit un maillage du domaine, grâce auquel on va définir un espace V_h , sous espace vectoriel de V de dimension N_h (par exemple V_h sera l'ensemble des fonctions continues sur Ω et affines sur chaque maille). Le problème approché est alors :

$$(P_h) \begin{cases} \text{trouver } u_h \in V_h \text{ tel que} \\ a(u_h, v_h) = l(v_h), \forall v_h \in \Omega \end{cases}$$

Soit $(\varphi_1, \varphi_2, \dots, \varphi_{N_h})$ une base de V_h . En décomposant u_h sur cette base sous la forme : $u_h = \sum_{i=1}^N u_i \varphi_i$, le problème (P_h) devient :

$$(P_h) \begin{cases} \text{trouver } u_1, u_2, \dots, u_N \text{ tels que} \\ \sum_{i=1}^N u_i a(\varphi_i, v_h) = l(v_h), \forall v_h \in V_h \end{cases}$$

Ou encore par linéarité de a et l :

$$(P_h) \begin{cases} \text{trouver } u_1, u_2, \dots, u_N \text{ tels que} \\ \sum_{i=1}^N u_i a(\varphi_i, \varphi_j) = l(\varphi_j), \forall j = 1 \dots N \end{cases}$$

C'est à dire résoudre le système linéaire suivant :

$$\begin{pmatrix} a(\varphi_1, \varphi_1) & \dots & \dots & a(\varphi_N, \varphi_1) \\ a(\varphi_1, \varphi_2) & \dots & \dots & a(\varphi_N, \varphi_2) \\ & & \vdots & \\ & & & \vdots \\ a(\varphi_1, \varphi_N) & \dots & \dots & a(\varphi_N, \varphi_N) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u_1 \\ u_2 \\ \vdots \\ u_N \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} l(\varphi_1) \\ l(\varphi_2) \\ \vdots \\ l(\varphi_N) \end{pmatrix}$$

Ou simplement $A u = b$.

6. CAS TESTS DE VALIDATION

Dans ce présent travail, nous présentons deux vérifications de la validité de nos simulations une première validation concernant le cas d'une cavité différentiellement chauffée. L'effet Marangoni a fait l'objet de la deuxième validation.

6.1. PREMIER CAS TEST

6.1.1. Convection naturelle dans une cavité carrée différentiellement chauffée

Le premier cas test correspond à la convection naturelle dans une cavité différentiellement chauffée, cas étudié numériquement par G. De Vahl Davis [6] pour différent nombre de Raleigh.

6.1.2. Un peu d'histoire sur le phénomène étudié

Les premiers travaux portant sur la convection naturelle ont été entrepris, dans les années 60 du siècle dernier, par G. De Vahl Davis et al (1960,1968). En 1972, Stewart et Weinberg [7] furent parmi les premiers à étudier la convection naturelle au sein d'une cavité rectangulaire bidimensionnelle avec des parois horizontales adiabatiques, et des parois verticales isothermes, pour des valeurs du nombre de Prandtl qui varient de 0.0127 à 10. A la fin des années quatre-vingt, et grâce au développement des algorithmes de résolution et l'amélioration des puissances de calcul des ordinateurs, G. De Vahl Davis (1983) a proposé une solution standard dite Benchmark pour le cas de la cavité carrée différentiellement chauffée en régime laminaire. Aussi le problème de convection naturelle dans une cavité carrée est devenu un point de référence afin de comparer les performances des modèles numériques.

6.1.3. Convection naturelle

La convection naturelle désigne le processus de transfert thermique résultant du mouvement des particules élémentaires d'un fluide entre des zones ayant des températures différentes. Ce mouvement entraîne un mélange des particules fluides, qui échangent de l'énergie et de la quantité de mouvement entre elles. La convection naturelle a pour origine les variations de la masse volumique au sein même du fluide, liées aux variations de sa température et sa composition.

6.1.4. Nombre de Rayleigh

C'est un nombre sans dimension caractérisant le transfert de chaleur au sein d'un fluide. Lorsque le nombre de Rayleigh dépasse sa valeur critique, toute perturbation aléatoire est alors amplifiée et l'état de repos devient instable. Un mouvement de convection s'établit et provoque la distorsion du réseau d'isothermes.

$$Ra_t = \frac{g\alpha d^3 \Delta T}{\nu^2} \frac{\nu}{\kappa} = \frac{g\alpha d^3 \Delta T}{\kappa \nu} \quad (3.8)$$

Où

- α : La diffusivité thermique,
- β_t : Le coefficient d'expansion thermique
- k : la conductivité thermique
- ν : La viscosité cinématique,
- d : L'épaisseur de la couche de liquide et
- g : la gravité.

6.1.5. Configuration étudiée

On se propose d'étudier le phénomène de la convection naturelle dans un espace confiné contenant de l'air. La configuration de l'écoulement est illustrée sur la Figure 3.2. Il s'agit d'une enceinte carrée, les parois parallèles verticales sont soumises à des températures uniformes. Les autres parois (supérieure et inférieure) sont considérées adiabatiques. La température de la paroi droite est inférieure à la température ambiante à l'intérieur de la cavité. Un écoulement de fluide va donc s'établir vers le bas. La paroi opposée est plus chaude que l'ambiance, et c'est un écoulement ascendant qui va se mettre en place.

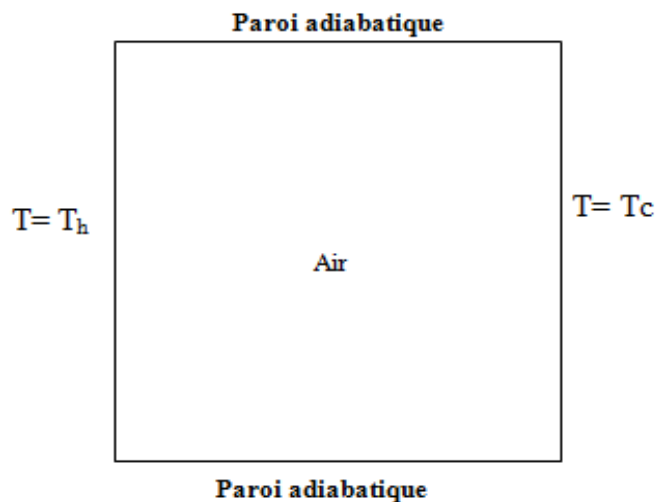


Figure 3.2: Schéma de la configuration utilisée dans le test de validation N01

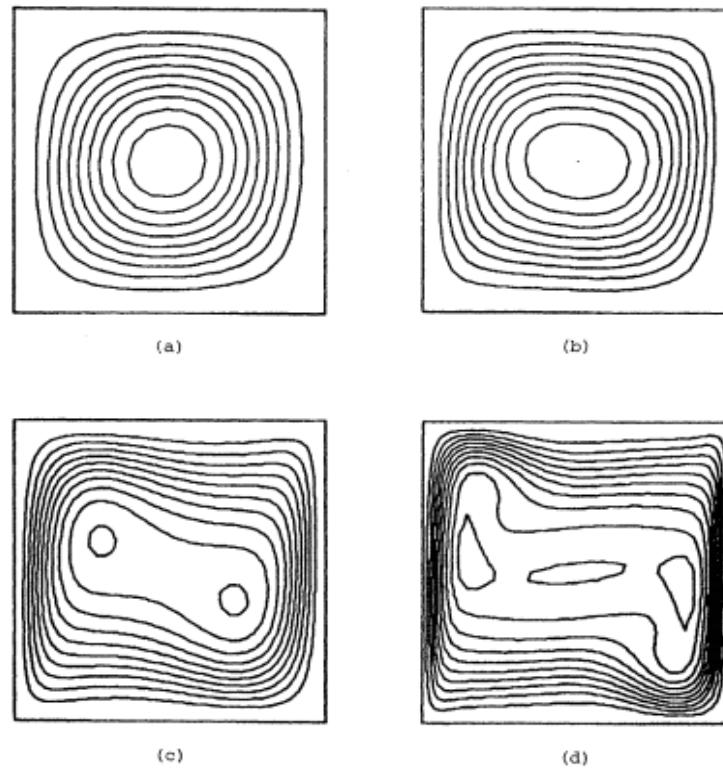


Figure 3.3: Fonctions de courant pour différents nombre de Rayleigh. (a): $Ra = 10^3$, (b): $Ra = 10^4$, (c): $Ra = 10^5$, (d): $Ra = 10^6$. (Résultats du Benchmark [6])

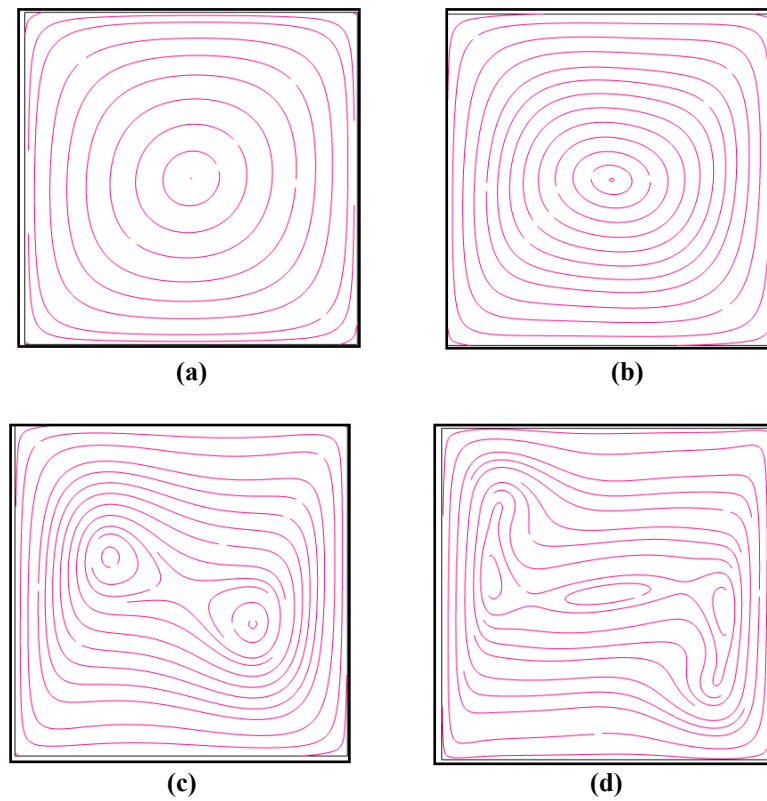


Figure 3.4: Fonctions de courant pour différents nombre de Rayleigh. (a): $Ra = 10^3$, (b): $Ra = 10^4$, (c): $Ra = 10^5$, (d) : $Ra = 10^6$ (Résultats obtenus par nos simulations)

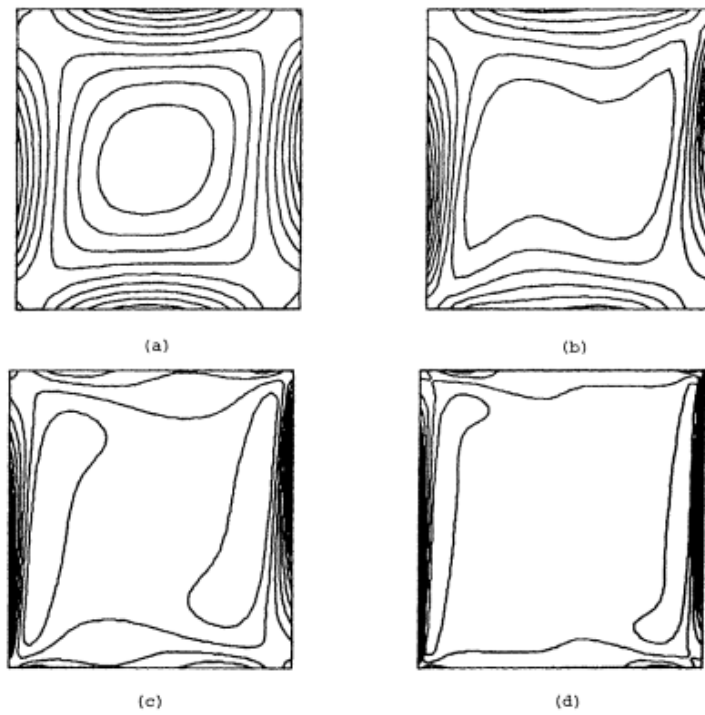


Figure 3.5: Contours de vorticité pour différents nombre de Raleigh: (a) $Ra=10^3$, (b) $Ra=10^4$, (c) $Ra=10^5$ et (d) $Ra=10^6$ (Résultats du Benchmark [6]).

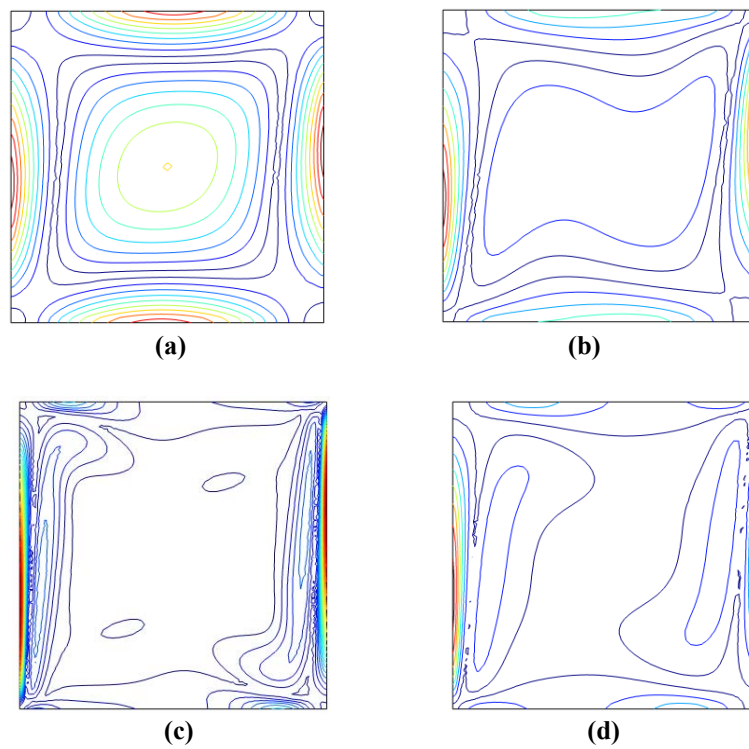


Figure 3.6: Contours de vorticité pour différents nombre de Raleigh: (a) $Ra=10^3$, (b) $Ra=10^4$, (c) $Ra=10^5$ et (d) $Ra=10^6$ (Résultats obtenus par nos simulations).

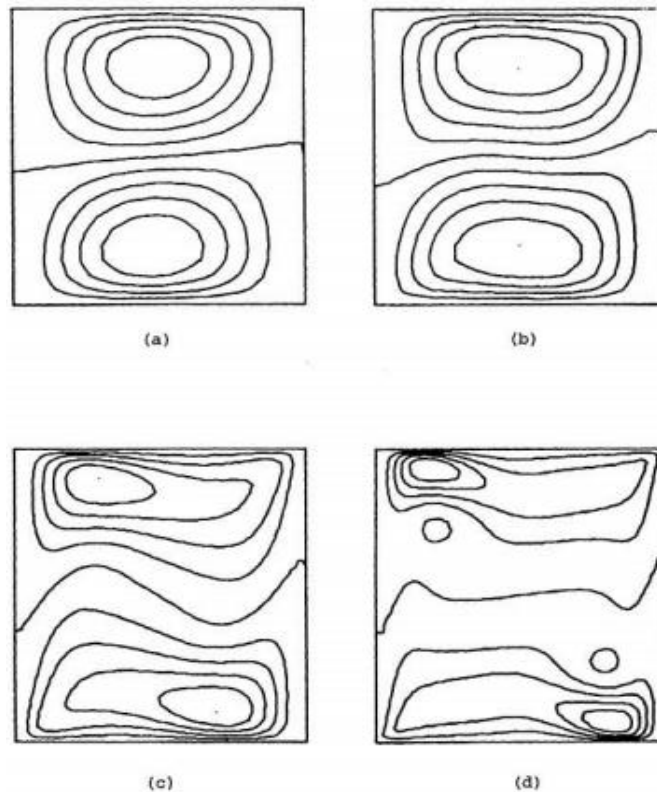


Figure 3.7: Contours de vitesse horizontale pour différents nombre de Raleigh. (a) $Ra=10^3$, (b) $Ra=10^4$, (c) $Ra=10^5$ et (d) $Ra=10^6$ (Résultats du Benchmark [6]).

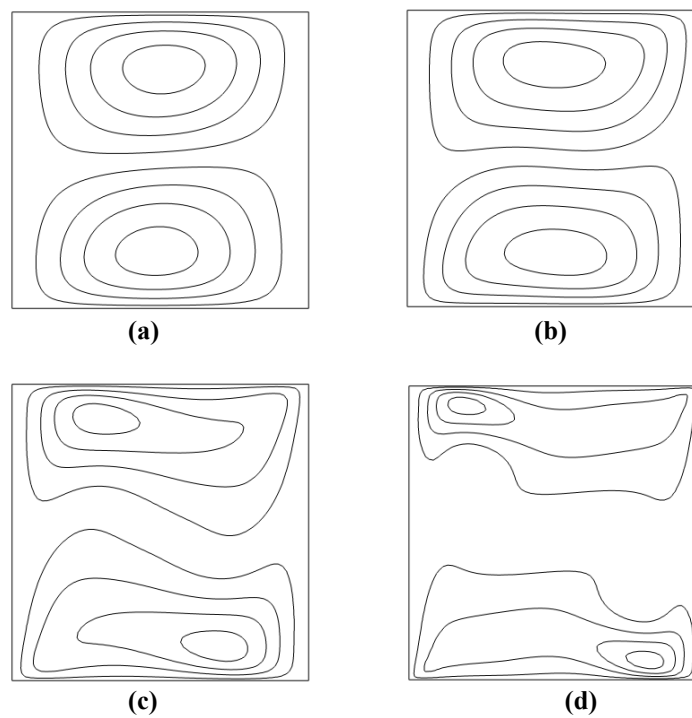


Figure 3.8: Contours de vitesse horizontale pour différents nombre de Raleigh: (a) $Ra=10^3$, (b) $Ra=10^4$, (c) $Ra=10^5$ et (d) $Ra=10^6$ (Résultats obtenus par nos simulations).

Sur les Figures 3.3–3.8 ci dessus, nous donnons une illustration des résultats obtenus par Comsol MultiPhysics et ceux obtenus par [6], qui correspondent aux fonctions de courants, contours de vorticit   ainsi que les contours de la composante horizontale de vitesse. L'analyse qualitative des graphes sugg  re un bon accord entre les deux r  sultats.

6.2. DEUXIEME CAS TEST

6.2.1. Convection de Marangoni

Dans cette deuxi  me validation, on va   tudier la convection de Marangoni en deux dimensions (Figure 3.9), dans une caviti   de longueur L remplie d'ac  tone    une hauteur h et soumise    un gradient de temp  rature horizontal ΔT , pour le cas de nombres de Marangoni et de Rayleigh: $Ma = 7980$ et $Ra = 2212$. Ce ci correspond au cas   tudi   par Didier Villers en 1989 [8], [9].

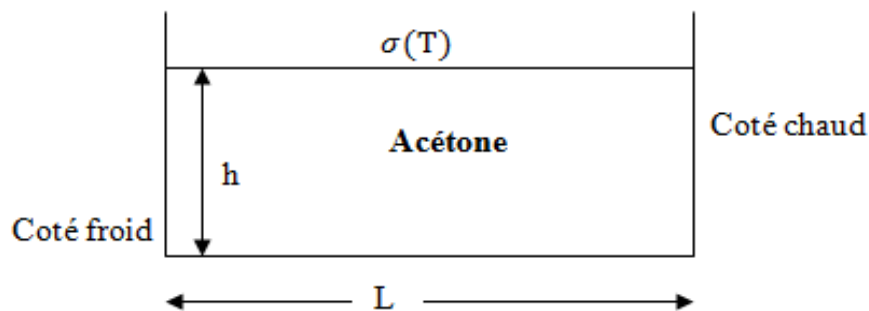


Figure 3.9: Sch  ma de la configuration   tudi  e

6.2.2. D  finition

La convection capillaire (ou de Marangoni) appara  t dans les liquides pr  sentant une surface libre pour lesquels la tension de surface est susceptible d'  tre modifi  e par la pr  sence d'  l  ments tensio-actifs (m  me en tr  s faible teneur) ou par des gradients de temp  rature ou de concentration.

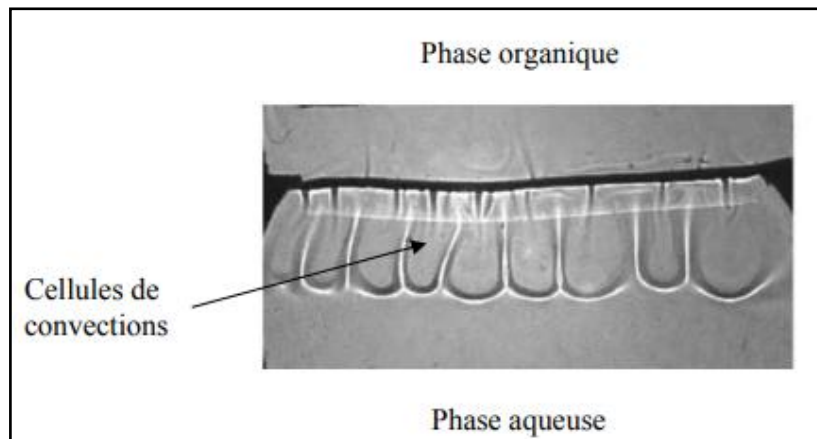


Figure 3.10: Instabilité de Marangoni observée dans un système liquide-liquide en cellule de Hele-Shaw disposée verticalement [10]

6.2.3. Tension superficielle ou énergie de surface

Les molécules d'une phase liquide au repos sont soumises à des forces cohésives avec leurs voisines. Dans le cas où le liquide possède une surface libre, les molécules loin de la surface possèdent de nombreuses voisines et donc une énergie d'interaction importante. Par contre, les molécules à la surface ont beaucoup moins d'énergie d'interaction. Créer une interface revient donc à perdre une partie de cette énergie de cohésion. Pour se remédier à ce déficit d'énergie, une énergie de surface entre en jeu. Cette énergie est appelée énergie de surface ou tension superficielle.

6.2.4. Bref historique sur l'instabilité de Marangoni

L'instabilité de Marangoni a été étudiée pour la première fois par le physicien James Thomson en 1855. L'effet plus général tient son nom du physicien italien Carlo Marangoni qui l'étudia et publia ses résultats en 1865. Un traitement théorique complet fut donné en 1878 par Willard Gibbs. Depuis le milieu du XXe siècle, de nombreuses études ont été menées sur la stabilité des écoulements convectifs d'origine thermocapillaire [10].

Cette instabilité est caractérisée par un nombre adimensionnel, dit nombre de Marangoni (Ma), défini par le rapport entre le gradient de la tension superficielle et les effets dissipatifs (viscosité et diffusion thermique), à savoir

$$Ma = \frac{\partial \sigma}{\partial T} \frac{L \Delta T}{\alpha \mu} \quad (3.9)$$

Où

- $\frac{\partial \sigma}{\partial T}$ représente la dépendance de la tension de surface (σ) à la température.
- α la diffusivité thermique du liquide.
- μ la viscosité dynamique du liquide.
- ΔT et L respectivement une différence de température caractéristique et une longueur caractéristique.



Figure 3.11: Fonctions de courant ($\Delta T=1.2$ K et $h=1.75$ mm)

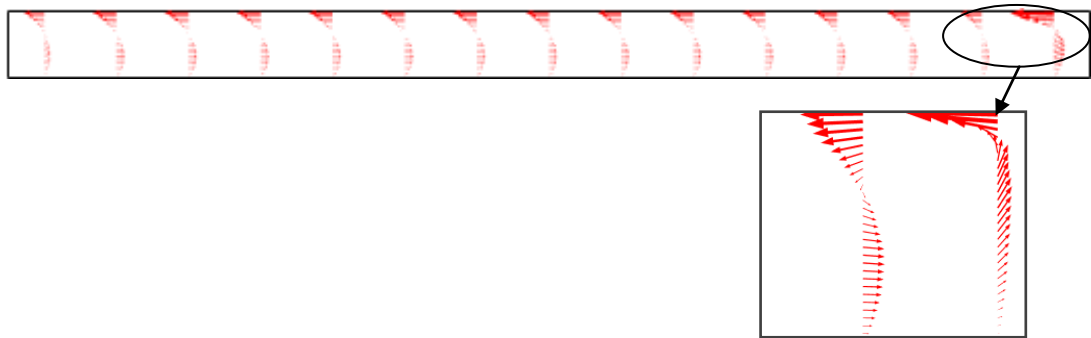


Figure 3.12 : Vecteurs vitesse ($\Delta T=1.2$ K et $h=1.75$ mm)

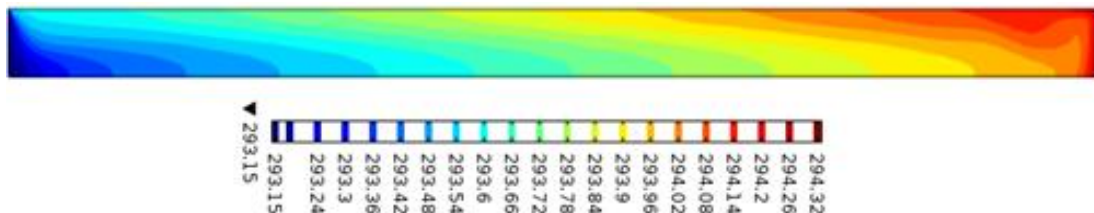
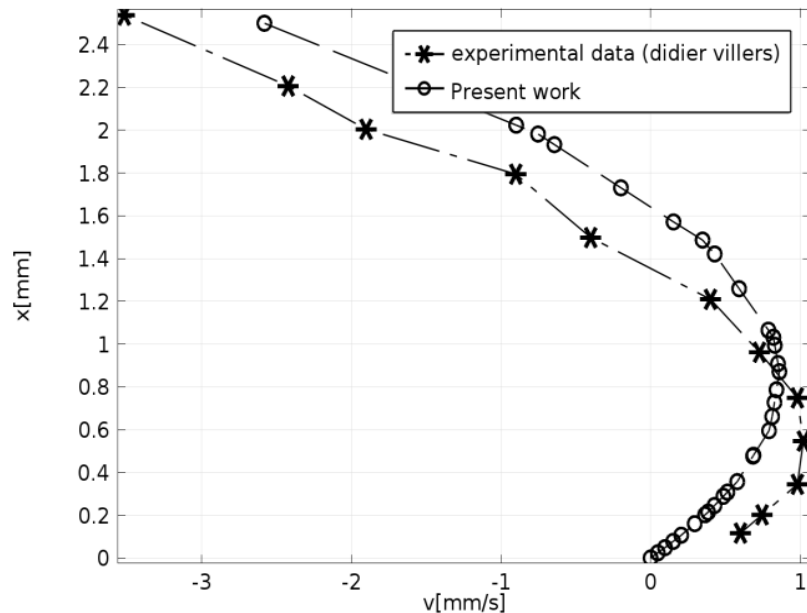


Figure 3.13: Profil de température ($\Delta T=1.2$ K et $h=1.75$ mm)

Les Figures 3.11 à 3.13 montrent les champs dynamique (fonctions de courant et vecteurs vitesse) et thermique dans la cavité pour un $\Delta T = 1.2$ et $h = 1.75\text{mm}$. Les Figures 3.14 (a) et (b) comparent la variation de la composante de vitesse horizontale V_x le long de la médiane verticale de la cavité pour deux cas, le premier cas correspond à $\Delta T = 0.8$ et $h = 2.5\text{mm}$, le deuxième cas correspond à $h = 1.75\text{mm}$ et $\Delta T = 1.2$. Ces deux graphes comparent les résultats obtenus par nos simulations (issus des calculs par Comsol) et ceux de la référence [8].

Nous remarquons que les valeurs obtenues par nos simulations sont proches et reproduisent d'une manière satisfaisante les mêmes effets des résultats issus de la référence [8], cependant, nous remarquons une légère différence entre les deux résultats. D'un point de vue numérique ces écarts peuvent être dus aux oscillations introduites par la méthode implémentée dans Comsol aux tolérances relative et absolue des solveurs mis en œuvre pour la solution des équations différentielles. Malgré ces légères différences, nous pouvons considérer que cette comparaison permet d'estimer la validité de nos calculs.



(a)

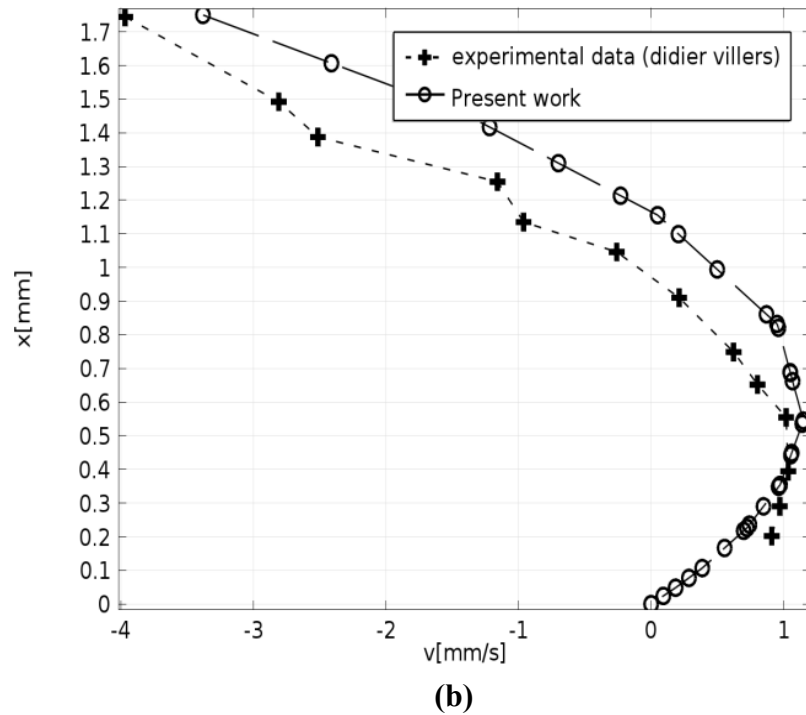


Figure 3.14 : Profil de vitesse horizontale le long de la médiane verticale de la cavité (Comparaison entre les valeurs expérimentales de Didier Villers, 1989, [8]) et nos résultats numériques ((a): $h=2.5\text{mm}$, $\Delta T=0.8$, (b): $h=1.75\text{mm}$ et $\Delta T=1.2$)).

7. Sensibilité au Maillage

Un maillage de qualité est primordial pour obtenir une bonne convergence du calcul numérique et de bons résultats lors de la simulation. Nous avons effectué des tests successifs avec un maillage de plus en plus raffiné, afin de voir si des différences se font sentir sur les résultats que nous obtenons, dans l'optique de déterminer la meilleure précision.

Le test de sensibilité par rapport au maillage a été effectué pour cinq densités différentes de maillage (1, 2, 3, 4 et 5) en détectant l'instabilité produite dans la cellule et en évaluant le flux diffusif en un point se situant à 1mm en dessous l'interface dans les mêmes conditions ($Da = 1$, $C_{02}/C_{01}=1$). Tous les maillages étudiés sont raffinés à l'interface afin d'assurer une bonne précision de calcul de tout les paramètres (concentration, vitesse, température) et pour détecter la moindre instabilité dans cette zone.

Tableau 3.1: Différent maillages utilisés en test de sensibilité

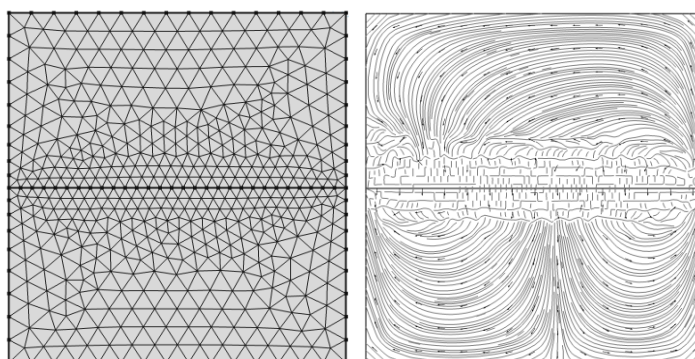
Maillage	Nombre d'éléments
N01	978
N02	6316
N03	7650
N04	8638
N05	10370

La Figure 3.15 montre les différents maillages utilisés dans le test de sensibilité et les motifs formés dans la cellule de Hele Shaw à $t=2s$, pour chaque maillage.

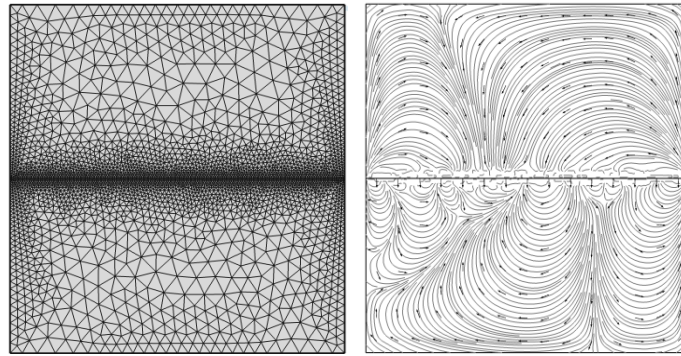
La Figure 3.17 présente l'évolution temporelle du flux diffusif en un point situé à l'interface pour les différents maillages exposés dans le tableau 3.1.

Les analyses quantitative et qualitative de la Figure 3.17 laissent voir clairement que les trois Maillages N03, N04 et N05 présentent les mêmes tendances.

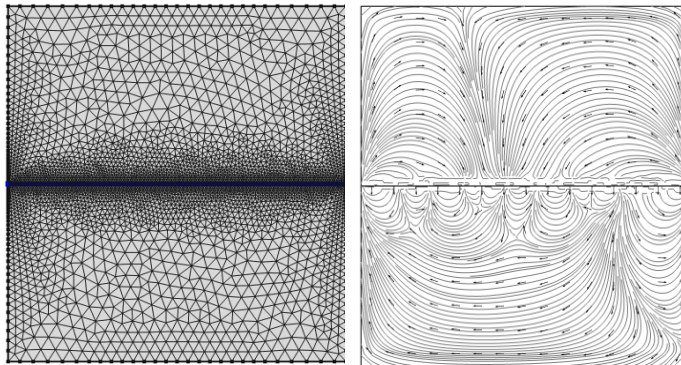
Il est évident qu'un maillage fin est souhaité pour toute simulation numérique, mais l'analyse qualitative de la Figure 3.15 suggère un bon accord entre les résultats numériques concernant le maillage N03 et expérimentaux [9]. Le maillage N03 a une capacité intéressante à détecter avec plus de précision les cellules convectives qui se produisent à l'interface. C'est pourquoi notre choix est porté sur ce maillage.



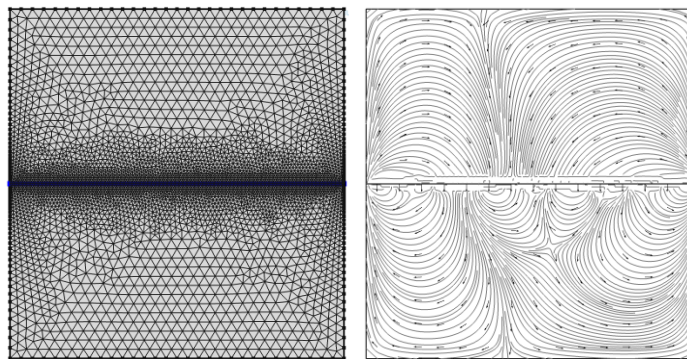
Maillage N01



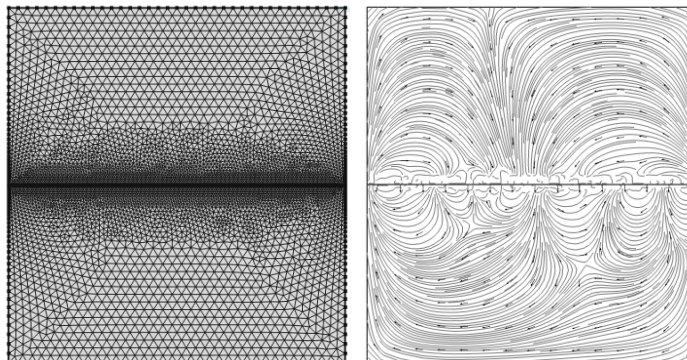
Maillage N02



Maillage N03



Maillage N04



Maillage N05

Figure 3.15 : Maillages utilisés dans le test de sensibilité et les différents schémas Chemo-hydrodynamiques correspondants

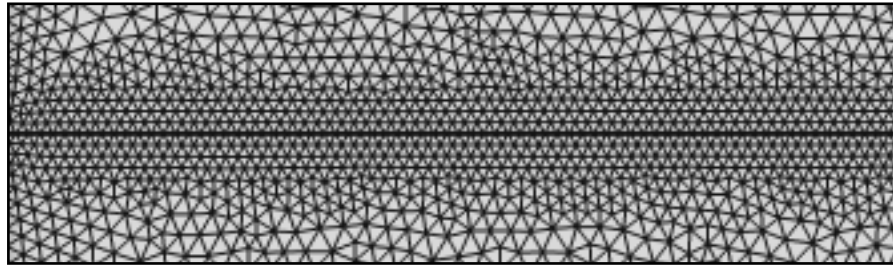
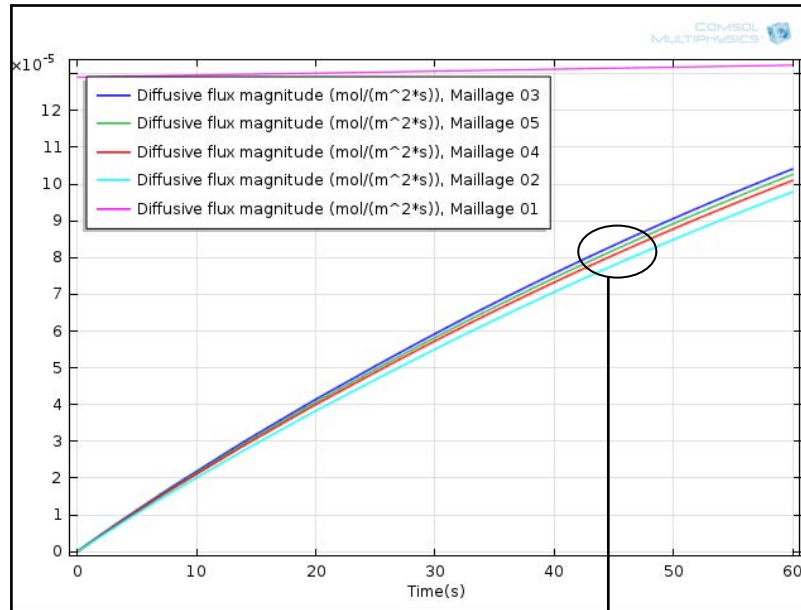
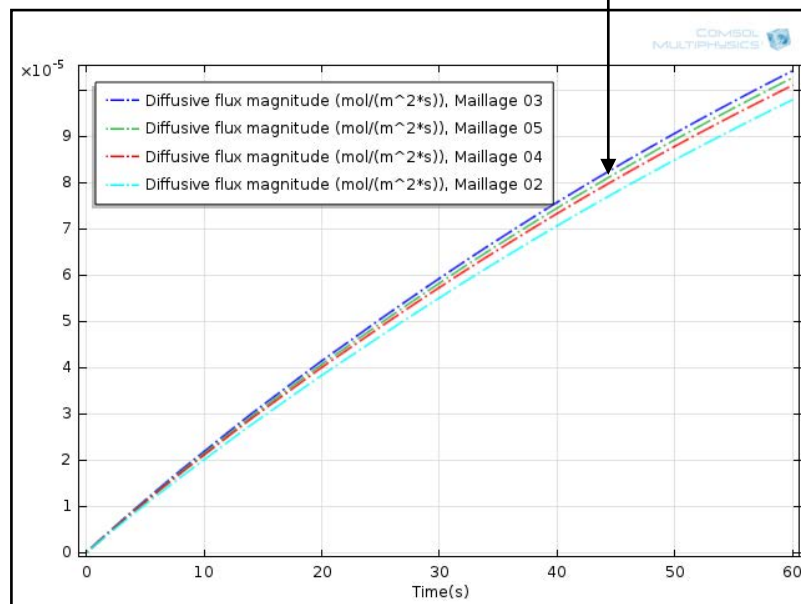


Figure 3.16 : Agrandissement du maillage N03 près de l'interface



(a)



(b)

Figure 3.17: (a) Evolution temporelle du flux diffusif en un point distant de 1mm de l'interface dans la phase aqueuse ($Da=1$, $C_{01}=C_{02}=1$ [mol/l]), (b) Agrandissement

8. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons exposé dans un premier temps la méthode numérique utilisée dans nos simulations et qui est la méthode des éléments finis. Nous avons montré d'une façon générale comment une EDP sera discrétisée avec les éléments finis. Dans un deuxième temps, nous avons validé nos calculs par deux cas test et à la fin nous avons vérifié l'effet du maillage sur nos calculs afin de choisir la grille adéquate. La visualisation des résultats est présentée dans le chapitre suivant.

Références Bibliographique Du Troisième Chapitre

- [1] Franck Pigeonneau, (2011), "Simulation numérique à l'échelle macroscopique par la méthode des éléments finis", Surface du verre et Interfaces, UMR 125 CNRS/Saint-Gobain.
- [2] Grégoire Allaire, (2012), "Analyse numérique et optimisation, Une introduction à la modélisation mathématique et à la simulation numérique", Éditions de l'École polytechnique.
- [3] David Manceau, "Analyse numérique des équations aux dérivées partielles: Introduction à la méthode des éléments finis", Université Le Havre.
- [4] Pierre Saramito, (2006), "Méthodes numériques avancées pour la résolution des équations aux dérivées partielles."
- [5] Alexandre Ern, (2005), "Aide-mémoire Eléments finis ". Paris.
- [6] G. De Vahl Davis, (1989), "Natural convection of air in a square cavity a bench mark numerical solution", International journal for numerical methods in fluids", Vol. 3, pp. 249-264.
- [7] Stewart et Weinberg, (1972), " Fluid flow in liquid metals: Experimental observations", Journal of Crystal Growth, Volume 12, Issue 3, Pages 228-238.
- [8] D. Villers, (1989), "Couplage entre les convections capillaire et thermogravitationnelle", Thèse de Doctorat, Université de Mons-Hainaut.
- [9] D.Villers, J.K.Platten (1992), "Coupled buoyancy and Marangoni convection in acetone: experiments and comparison with numerical simulations", J. Fluid Mech. Vol. 234, pp. 487-510.
- [10] Rawad Tadmouri, (2011), "Tensioactifs en système biphasique eau/huile: propriétés, transfert et instabilité de Marangoni", Thèse de Doctorat, Université Toulouse III - Paul Sabatier.

- [11] K. Eckert, A. Grahn, (1999), "Plume and Finger Regimes Driven by an Exothermic Interfacial Reaction", In: Physical Review Letters 82, S. 4436–4439.

Résultats et discussion

Résumé

Ce chapitre est consacré à l'étude des instabilités Chemo hydrodynamiques qui se produisent lorsque deux solutions non miscibles, contenant chacune un réactif, mises en contact selon une ligne horizontale.

Les schémas convectifs spatio-temporels peuvent devenir assez complexes dans ce cas. Lors du transfert d'un réactif d'une phase à l'autre, une multitude de modèles Chemo-hydrodynamiques peuvent se produire à la fois dans les couches supérieures et inférieures aussi.

Le but de ce chapitre donc, est d'analyser et d'interpréter tout les résultats de nos simulations avec Comsol MultiPhysics 4.3.

Chapitre 04: Résultats et interprétations

1. Introduction

Les réactions chimiques peuvent modifier les propriétés physiques d'une solution comme sa densité ou sa viscosité soit en modifiant le volume total, soit en libérant ou en consommant de la chaleur [1], [2]. Ces deux effets peuvent modifier et même déclencher des écoulements convectifs. Dans une telle situation, l'interaction entre le transfert de chaleur et le transfert de masse, d'une part, et entre la réaction elle-même et la diffusion des réactifs de l'autre part sont inévitables [3].

La densité d'une solution est fonction de sa température et de sa composition. Bien entendu, certaines réactions peuvent être exo- ou endothermiques et donc modifier à la fois la composition et la température, mais ici nous négligeons les effets de la chaleur, nous nous concentrons sur les changements de densité induits par des gradients de concentrations, ce qui signifie que la dynamique ici est principalement contrôlée par des effets solutaux, car il a été prouvé que les gradients de densité dus au chaleur sont quantitativement négligeables, du moment que la chaleur diffuse plus vite que la matière [4].

Afin de modéliser une expérience bien déterminée, nous avons basé nos calculs sur les données expérimentales d'Eckert et al (2004) [3]. Sur la base de ces données, nous avons calculé le nombre de Schmidt ($Sc = 980$) et le nombre de Lewis ($Le = 130$). Ces valeurs signifient que les processus hydrodynamiques et thermiques sont ici rapides par rapport au processus de réaction-diffusion. Les valeurs des nombres de Rayleigh thermique ($Ra = 5.34$) et solutaux ($Ra_1 = 2200$ et $Ra_2 = 1750$), signifient que la dynamique de l'expérience est contrôlée principalement par les effets solutaux. Le seul paramètre que nous ne connaissons pas exactement la valeur est le nombre de Damköhler comme nous n'avons pas la valeur exacte de la constante cinétique k_c .

Tous les nombres adimensionnels calculés à partir des données expérimentales [3] sont constants c'est pourquoi nous avons évité l'analyse adimensionnelle du phénomène. Sur ce fait, nous avons basé nos simulations sur trois facteurs importants :

Le premier est le rapport des concentrations initiales Acide/Base : C_{02}/C_{01} et qui est réellement le facteur qu'on varie dans les expériences aux laboratoires.

Le deuxième est l'espace entre les deux plaques de la cellule "d".

Le troisième est le nombre de Damköhler (Da) et qui est un nombre sans dimension utilisé en cinétique chimique pour définir les conditions opérationnelles d'une réaction. Ce nombre porte le nom de Gerhard Damköhler, chimiste allemand. Il est défini comme le rapport du temps caractéristique hydrodynamique (temps de transport convectif) au temps caractéristique chimique (temps de réaction) [5],

$$Da = \tau_h / \tau_c \quad \text{Avec}$$

$$\tau_c = 1 / (k_c C_0) \quad \text{Et} \quad \tau_h = \frac{d^2}{D_2}$$

Ce qui donne l'expression suivante : $Da = \frac{d^2 k_c C_0}{D_2}$ (4.1)

Avec d : Espace entre les deux plaques

k_c : Constante de réaction

C_0 : Concentration initiale

D_2 : Diffusivité moléculaire de l'acide dans la phase aqueuse

De ce fait:

- $Da = 1$, veut exprimer l'égalité entre les effets chimiques et hydrodynamiques.
- $Da > 1$, exprime la dominance des effets chimiques.
- $Da < 1$, exprime la dominance des effets hydrodynamiques.

2. Instabilité Chemoconvective

Le système de deux fluides immiscibles superposés dans une cellule de Hele Shaw est caractérisé par l'émission de motifs de panache et de doigts qui se développent depuis l'interface [4]. Après le contact immédiat de la phase organique et la phase aqueuse, l'acide propionique se diffuse dans la phase aqueuse sous forme de panaches.

Les Figures 4.1 et 4.2 présentent le champ de vitesse et les fonctions de courant à l'instant $t = 2s$ pour un $Da=1$ et des concentrations initiales d'acide et de base égale à 0.5 [mol/l] pour la première figure et à 1 [mol/l] pour la deuxième figure. Elles montrent clairement l'instabilité Chemo-hydrodynamique produite dans la cellule de Hele Shaw.

- Dans la couche supérieure, on remarque la formation de deux cellules contrarotatives représentées par deux vortex tournant l'un dans le sens horaire et l'autre dans le sens contraire des aiguilles d'une montre. Les couches-fluide inférieures de la phase organique deviennent pauvres en acide du fait de sa diffusion continue à travers la ligne de contact horizontale vers la couche inférieure (Figures 4.3, 4.4 et 4.5) et par conséquent ces couches deviennent ascendantes. Par continuité, les couches-fluide supérieures riches en acide auront un mouvement descendant, c'est le mécanisme de la convection de la couche diffusive (DLC) [3], [4], [6]. Ceci est attendu du moment que la solution acide est placée au-dessus de la solution basique plus dense avec l'acide se diffusant plus vite que la base (Figure 4.2 (b)). Aussi les couches-fluide près de l'interface sont légèrement plus chaude que les autres couches de la partie supérieure (Figure 4.6), de ce fait, il y aura déclenchement de l'instabilité de Rayleigh-Bénard [7]. On conclut donc qu'il y'a un couplage entre deux convections dans la phase supérieure.
- A l'interface, on remarque l'émission de petites cellules autrement appelées doigts de convection qui se développent depuis l'interface dans la phase aqueuse, confinées entre l'interface et le front de réaction (les sommets des doigts de convection) à une longueur de quelques millimètres (Figure 4.1 et 4.2).
- Dans la phase inférieure, comme l'acide frais continue à se diffuser à travers l'interface, une partie de cet acide sera rapidement consommée par la réaction de neutralisation qui prendra place dès que l'acide entre en contact avec la base, libérant de la chaleur et créant une zone plus chaude près de l'interface telle qu'observée sur les Figures 4.6 et 4.7. Malgré son faible effet (la chaleur) [6], elle cause des gradients de température transitoires déstabilisants ce qui déclenche l'instabilité de Rayleigh-Bénard [7], [8]. De ce fait nous aurons des doigts, riches en acide, plus chauds que les autres zones-fluide se déplaçant vers le bas mais à l'intérieure de chaque doigt on voit clairement (Figure 4.1 (b)) le mouvement ascendant des particules-fluide (Rayleigh-Bénard) [4]. Cette structure (les doigts) se forme à une faible distance de l'interface pénétrant dans la phase 1. Dans le sens inverse, les couches-fluide inférieures froides et

riches en base ont un mouvement ascendant vers l'interface du fait que les couches-fluide supérieures s'étant appauvries en base à cause de sa consommation par la réaction de neutralisation.

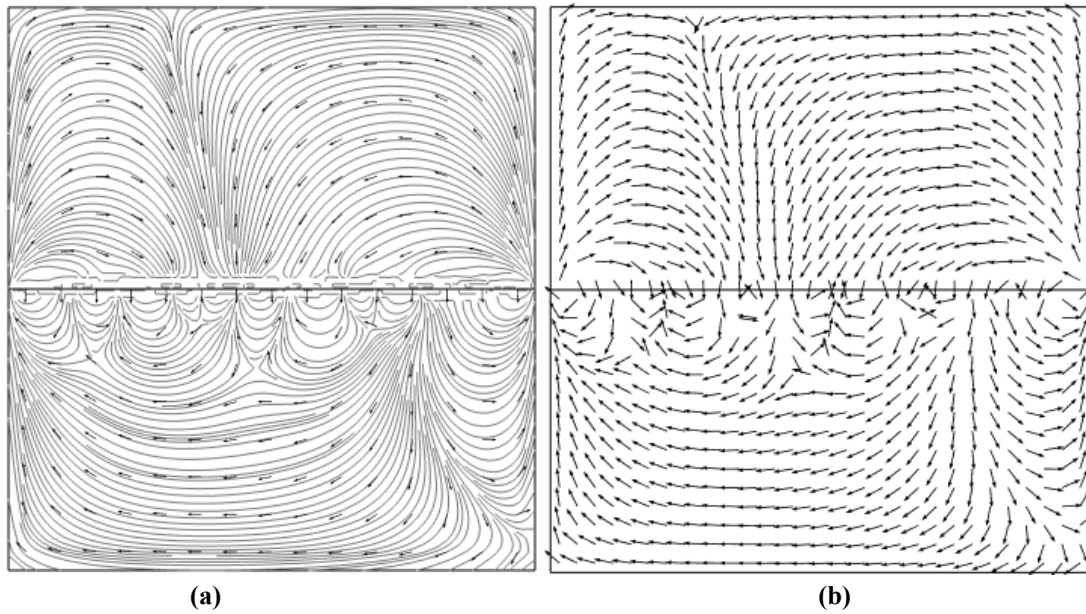


Figure. 4.1: (a) Lignes de courant pour $Da=1$ et $C_{01}=C_{02}=0.5$ [mol/l] à $t=2s$, (b) Champs Vecteurs vitesse pour $Da=1$ et $C_{01}=C_{02}=1$ [mol/l]

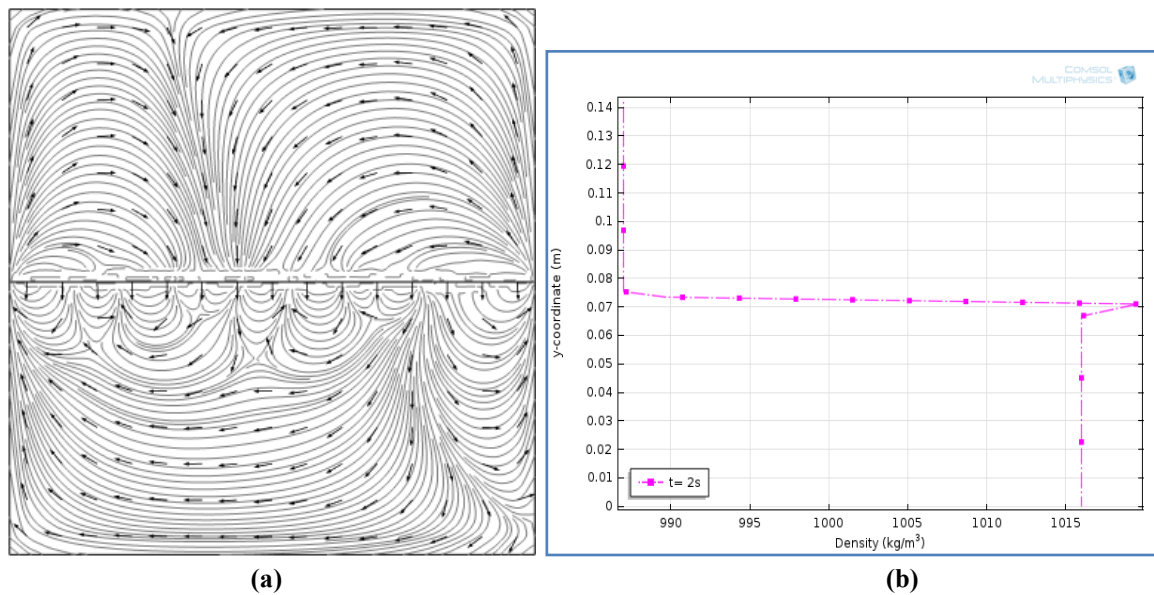


Figure 4.2: (a) Instabilité Chemoconvective dans la cellule de Hele-Shaw, (b) Zones de stratification instable de la densité totale ρ (y) à $t=2s$, $Da=1$ et $C_{01}=C_{02}=1$ [mol/l]

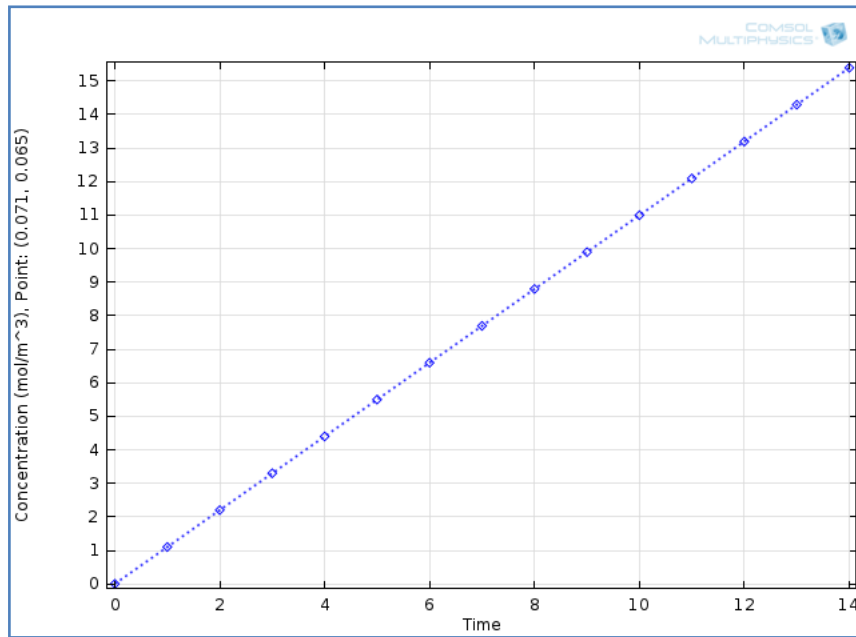


Figure 4.3: Evolution temporelle de la concentration d'acide à un point dans la phase Inferieure distant de 6mm de l'interface

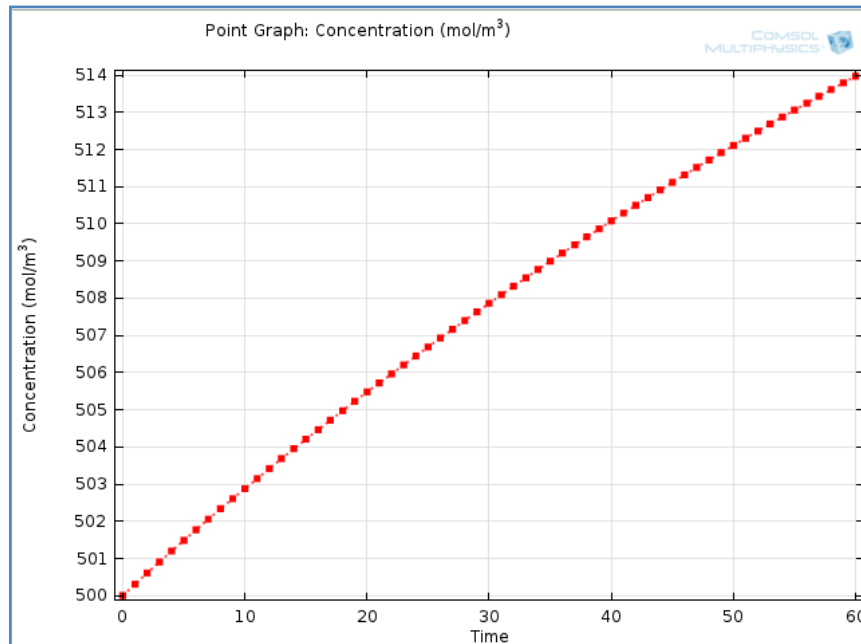


Figure 4. 4: Evolution temporelle de la concentration d'acide à l'interface ($C_{02}=0.5\text{mol/l}$)

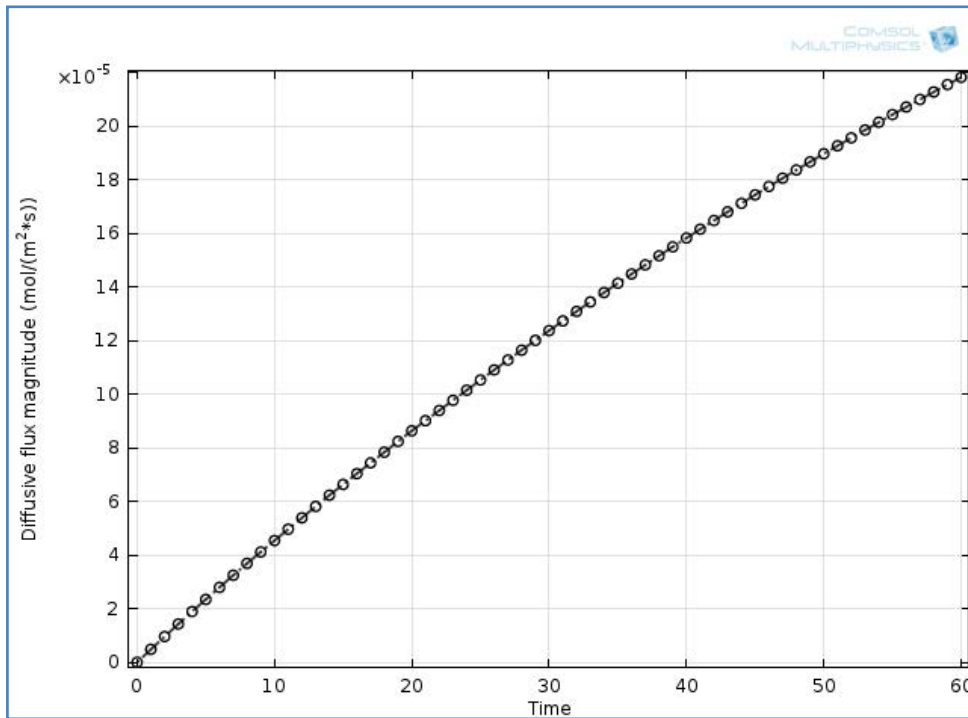


Figure 4.5: Evolution temporelle de l'amplitude du flux diffusif de l'acide à point distant de 1mm en dessous l'interface

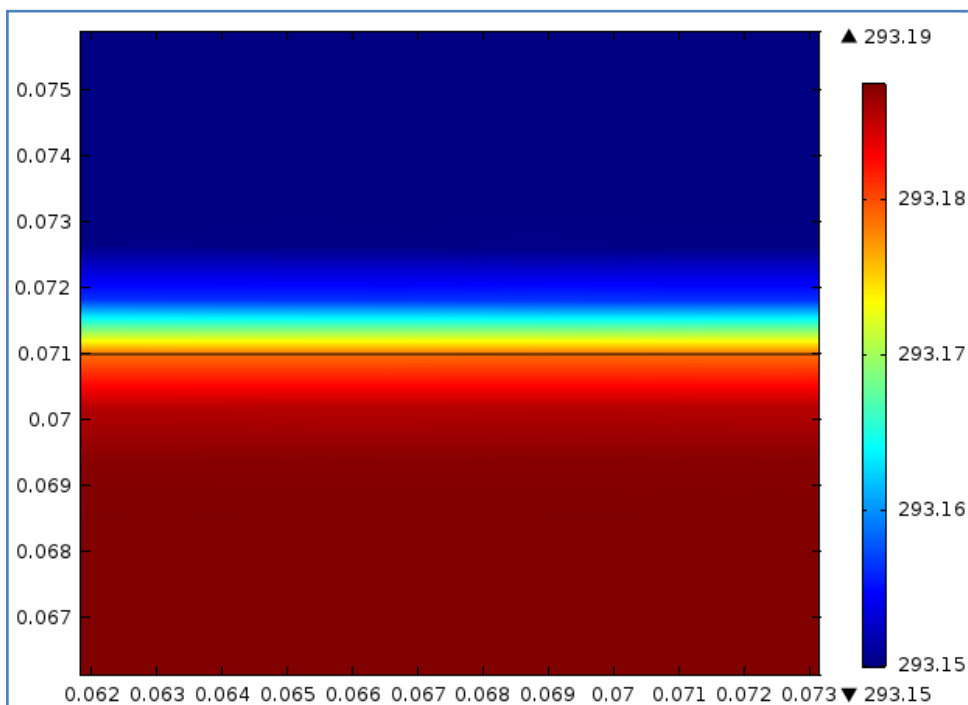


Figure. 4.6: Niveaux thermique dans la cellule de Hele Shaw à t=2s (Da= 1, C₀₁/C₀₂= 1)

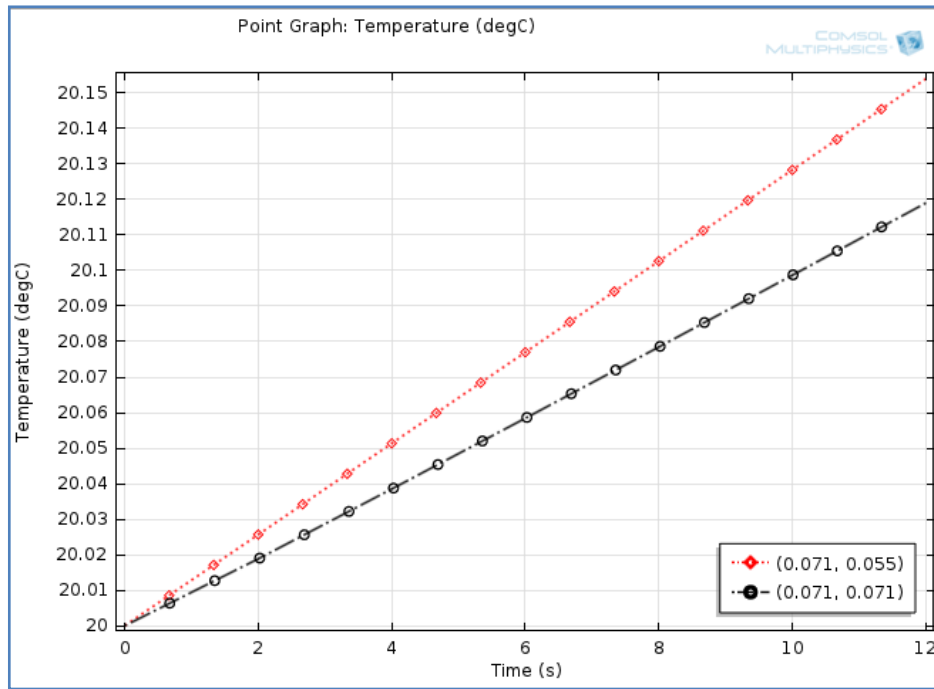


Figure 4.7: Evolution de la température avec le temps en deux points: un point à l'interface (0.071, 0.071) et à un point dans la phase inférieure (0.071, 0.055) distant de 16mm de l'interface pour (Da=1, et $C_{01} = C_{02} = 1 \text{ mol/l}$)

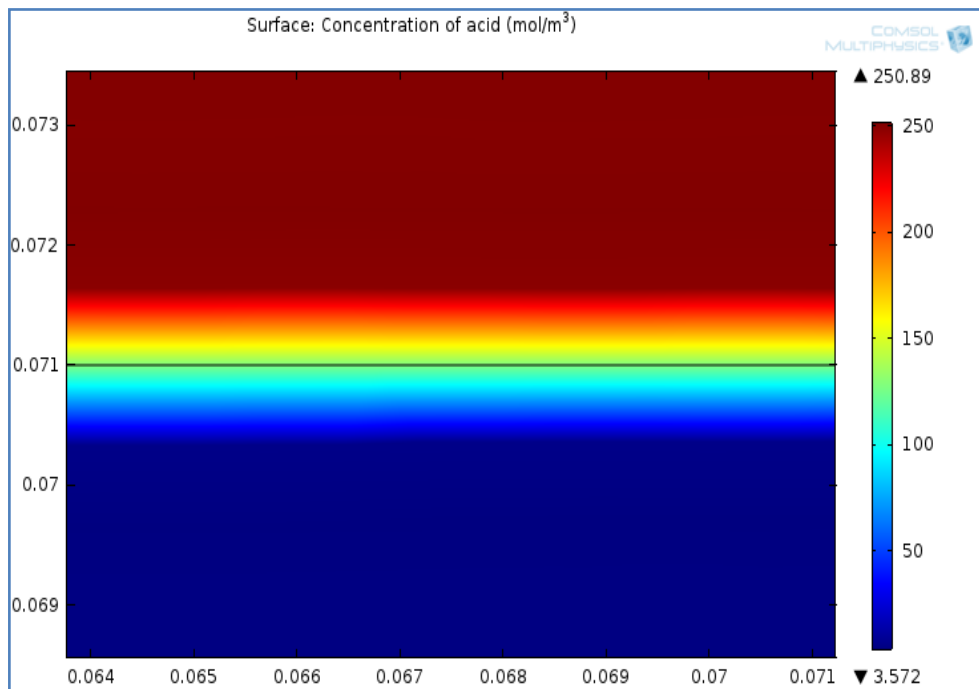


Figure 4.8: Concentration de l'Acide dans la cellule à t=2s, (Da=1, $C_{01} = C_{02} = 0.25 \text{ [mol/l]}$)

3. Évolution temporelle des schémas Chemo-hydrodynamiques

Afin d'observer et de déterminer l'évolution temporaire des motifs Chemo-convectifs formés dans la cellule de Hele Shaw, une série de simulations numériques à différents instants après le contact des deux phases a été réalisée et cela pour $Da = 1$, et $C_{02} = C_{01} = 1$ [mol/l].

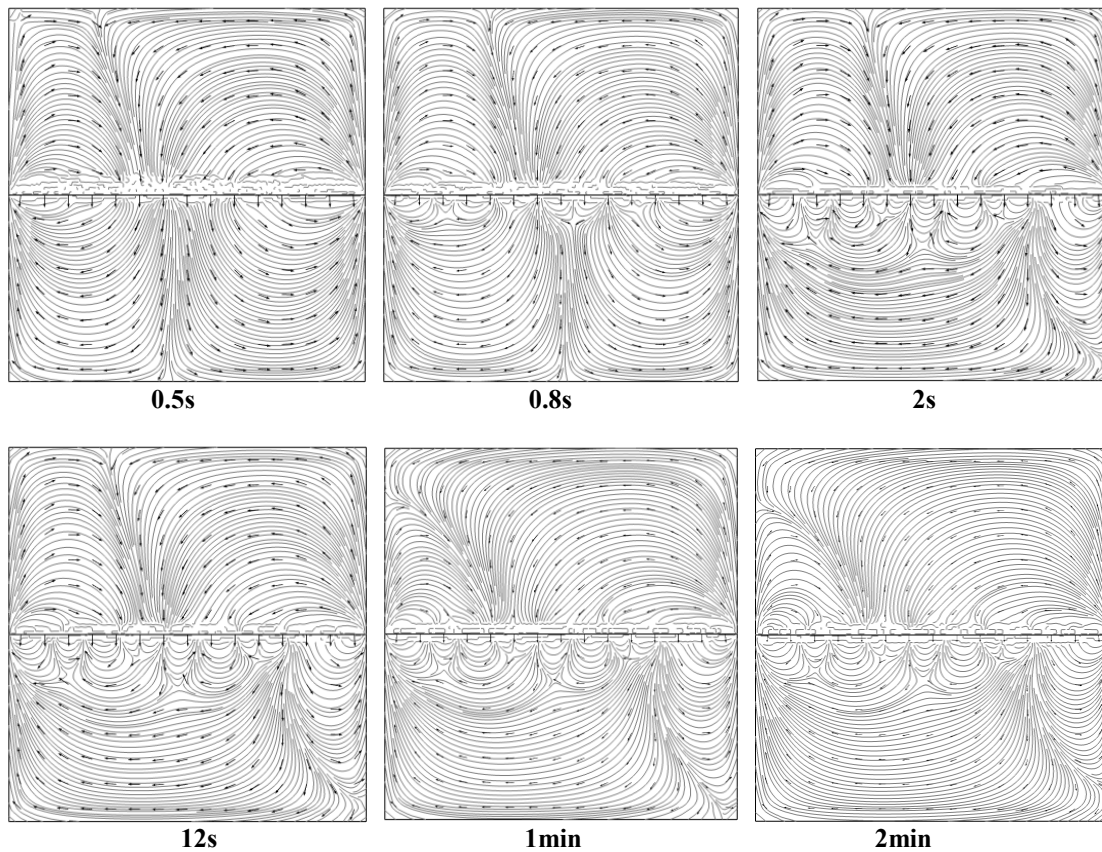


Figure 4.9: Evolution temporelle des lignes de courant pour $Da=1$ et $C_{01}=C_{02}=1$ [mol/l]

La Figure 4.9 montre les lignes de courant et la structure de l'écoulement du système dans la cellule de Hele Shaw et cela pendant différents instants.

Dès que les deux fluides se mettent en contact, un transfert de masse et une réaction chimique auront lieu simultanément [5], [9], conduisant à des instabilités dans le système. En effet au début l'acide se diffuse à travers l'interface dans la phase inférieure et réagit avec la base. Cette réaction de neutralisation dégage de la chaleur, ce qui rend les zones pas loin de l'interface plus chaudes que les autres zones (Figures 4.6 et Figure 4.7).

En observant la Figure 4.9, on remarque que la structure de l'écoulement à l'interface n'est pas bien déterminée pendant les premières secondes (Figure 4.9 ($t=0.5s$); ($t \approx 1s$)). On

remarque la formation de zones de mélange instables près de l'interface dans la phase supérieure [4], ceci est remarqué même en expériences [3], ces effets peuvent être réduits en utilisant des acides avec des longueurs de chaîne plus élevées [4]. Après quelques secondes, on remarque l'émission de motifs (doigts) qui se développent depuis l'interface vers la phase inférieure confinés entre l'interface et le front de réaction.

4. Profil de concentration

La Figure 4.8 montre le profil non uniforme de la concentration de l'acide dans la cellule de Hele-Shaw à $t = 2$ s. La couleur bleue indique une faible concentration d'acide dans la couche inférieure. Cela est évident tant que la réaction consomme la majorité de l'acide diffusé à travers l'interface.

Dans la Figure 4.10, le point 1 (0,071, 0,071) est un point à l'interface, le point 2 (0,071, 0,075) est à une distance de 4 mm au-dessus de l'interface, et le point 3 (0,071, 0,065) est à une distance de 6 mm sous l'interface (voir Figure 4.11). Les profils de concentration d'acide en ces points montrent clairement que la réaction consomme la plus grande partie de l'acide se diffusant dans la phase inférieure. La Figure 4.12 confirme ceci vue la consommation de la base en un point juste en dessous l'interface.

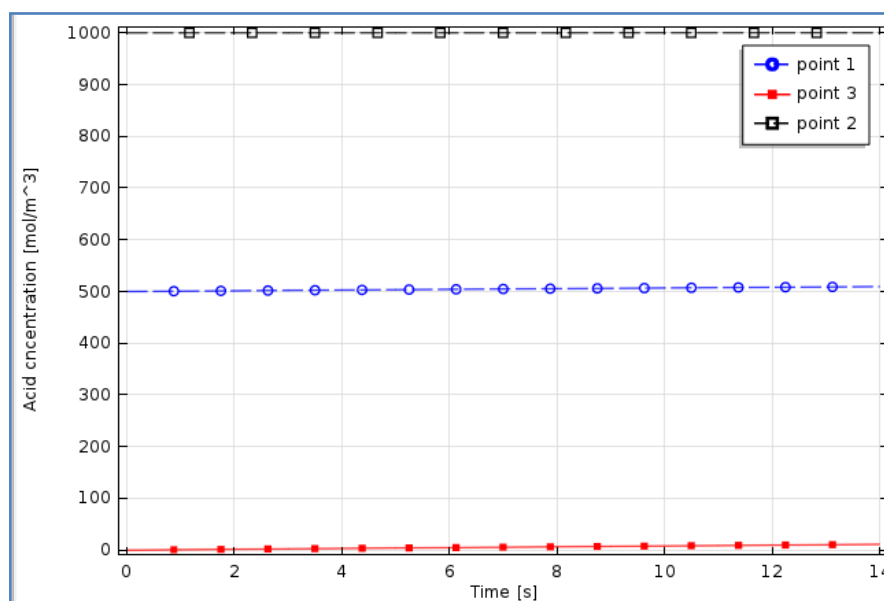


Figure 4.10 : Evolution temporelle de la concentration d'acide en trois points de la cellule

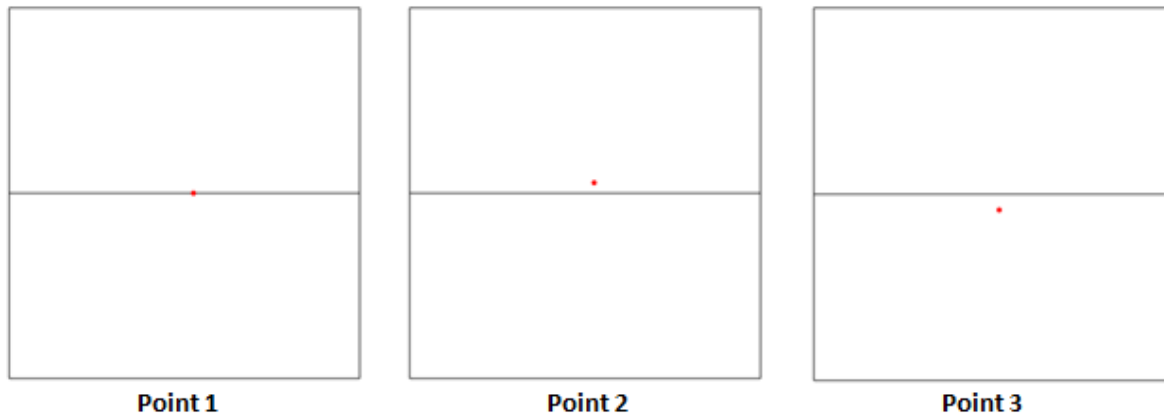


Figure 4.11: Position des trois points (choisis dans la Figure 4.10) par rapport à l'interface

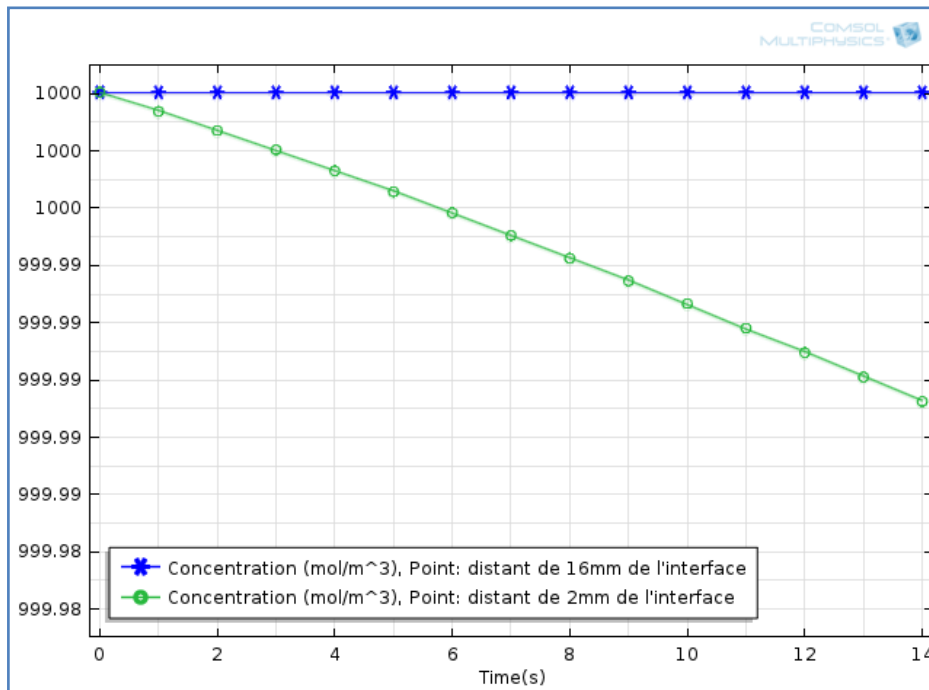


Figure 4.12: Concentration de la base dans la cellule à t =2s, (Da=1, C₀₂= C₀₁=1[mol/l])

5. Profil de vitesse

La Figure 4.13 représente l'évolution de la vitesse en fonction du temps en quatre points dans la phase inférieure: (0,71, 0,070), (0,071, 0,069), (0,071, 0,068) et (0,071, 0,065) distants de 1 mm, 2 mm, 3 mm et 6 mm de l'interface respectivement. Les profils de vitesse sont vérifiés à ces points car ils représentent la région entre l'interface et le front de réaction.

Les profils donnent une idée très claire sur la dynamique dans cette zone. Comme l'illustrent les Figures 4.1 et 4.2, il existe deux régions: la région juste en dessous de l'interface où la dynamique est importante et la région du fond (bulk) où la dynamique est faible. Ceci est cohérent avec les profils en Figure 4.13, où il est clair que la vitesse atteint son maximum juste en dessous de l'interface et s'affaiblit davantage au fur et à mesure qu'on s'éloigne de l'interface vers le fond de la phase inférieure.

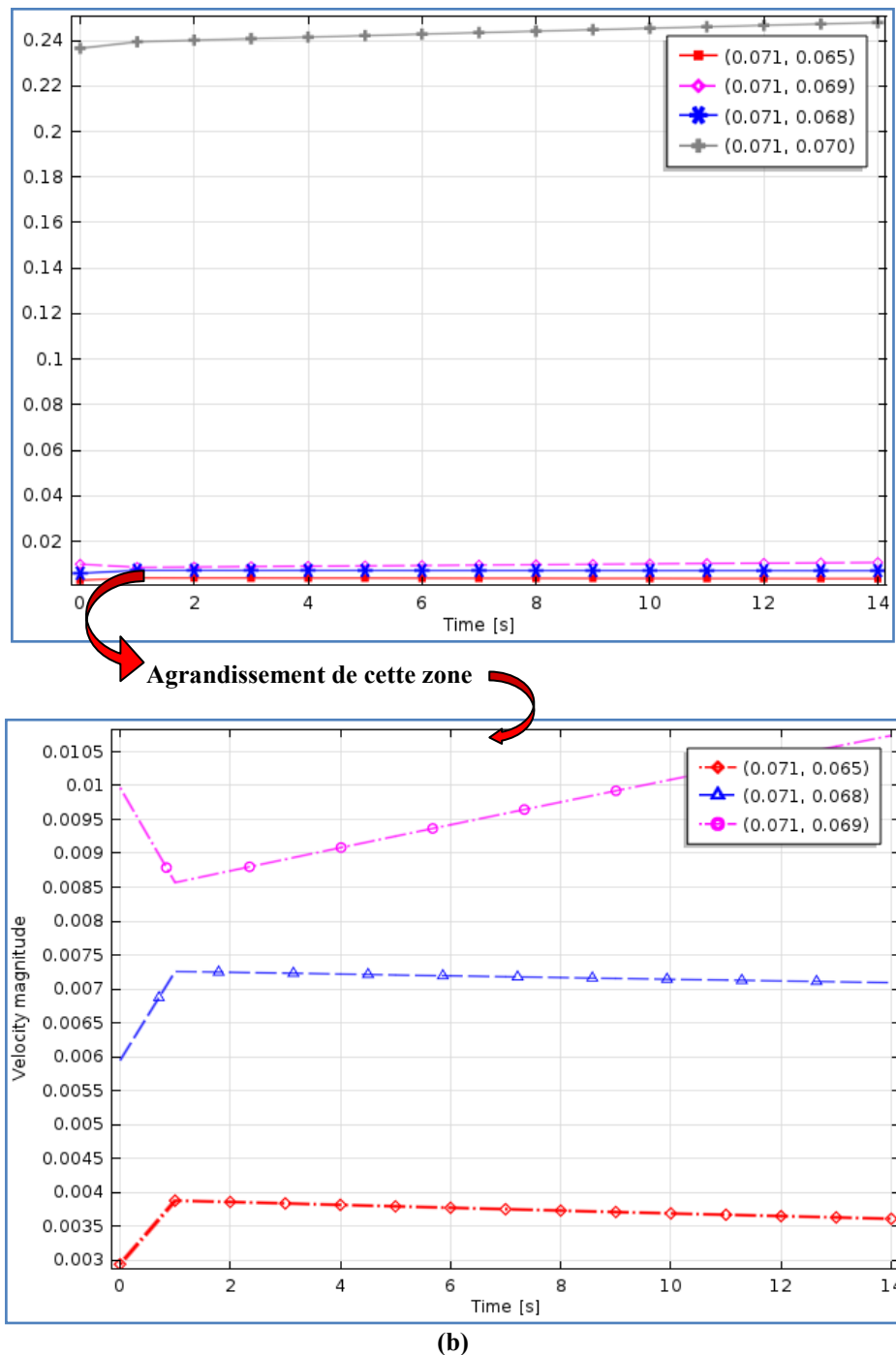


Figure 4.13: (a) : Evolution temporelle de la vitesse [μm/s] en trois points sous l'interface dans la phase inférieure (Da = 1, C₀₁ = C₀₂ = 1[mol / l]) (b) agrandissement

6. Effet de la gravité

La Figure 4.14 montre les motifs Chemo-convectifs qui se produisent dans la cellule en l'absence de la gravité (microgravité). Les instabilités produites sont différentes qualitativement de ceux de la Figure 4.9. On remarque que la gravité joue un rôle important dans l'accélération de l'apparition des instabilités dans le système et dans l'apparition des doigts de convection. Aussi du point de vue numérique, elle accélère l'apparition de l'état établi. Cela est évident tant que la gravité est le facteur générateur des instabilités induites par la flottabilité dans la cellule.

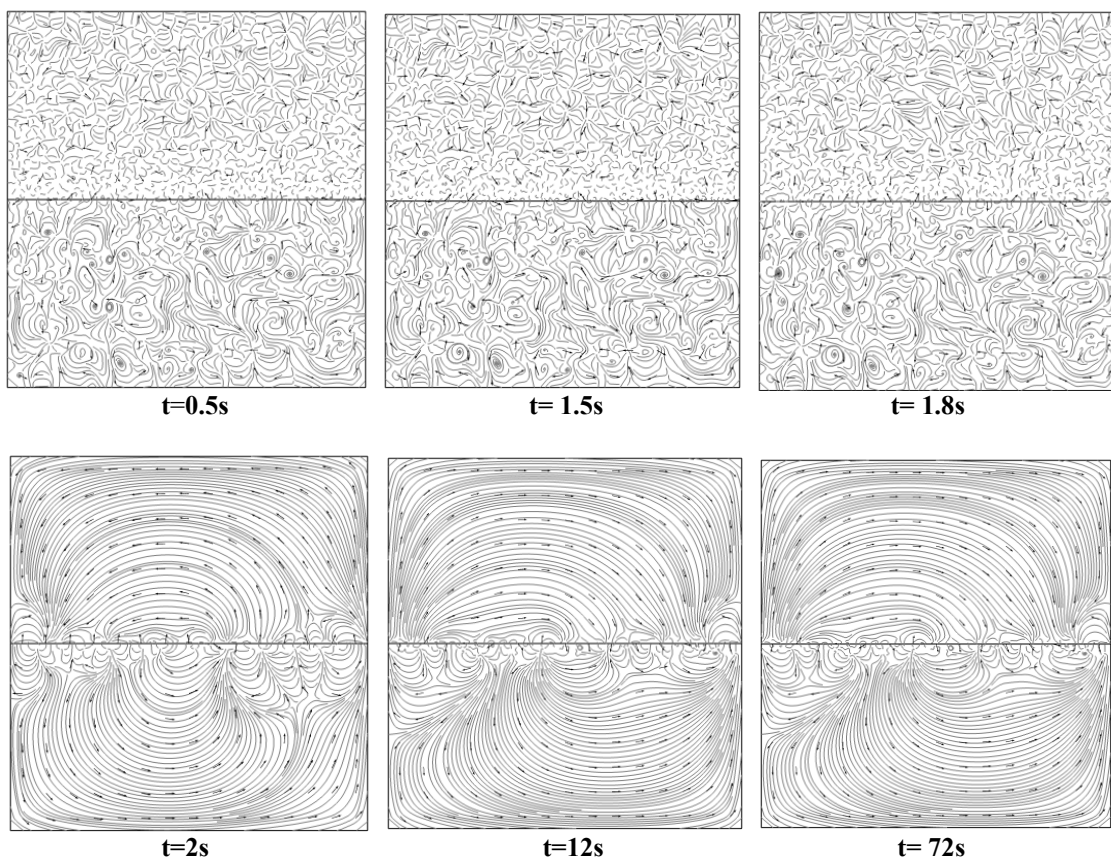


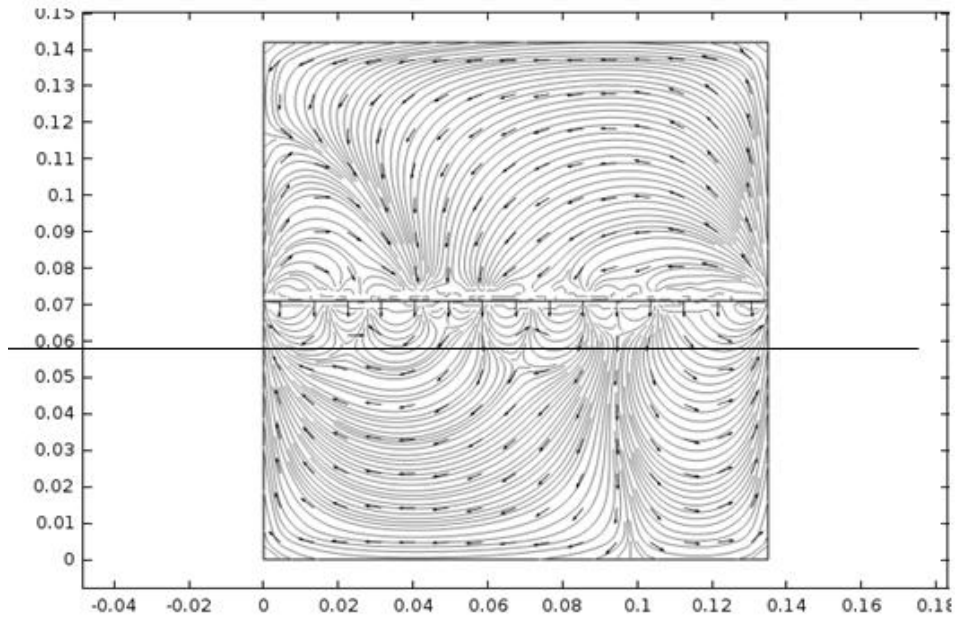
Figure 4.14: Lignes de courant pour $Da=1$, $C_{01}=C_{02}=1$ [mol/l] et $g = 0$

7. Effet des concentrations initiales

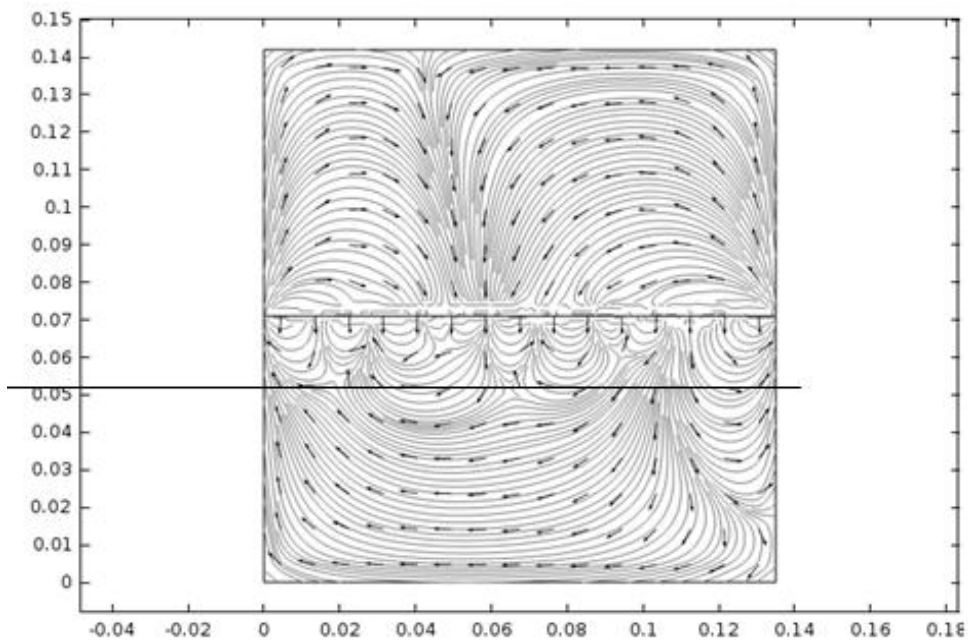
Dans cette partie nous allons inspecter l'effet des concentrations initiales C_{01} et C_{02} de base et d'acide sur les motifs Chemo hydrodynamiques formés dans la cellule. Nous sommes en

présence de deux cas: le cas où l'acide est en excès et le cas où la base est en excès. Toutes les simulations seront effectuées pour un nombre de Damköhler $Da=1$.

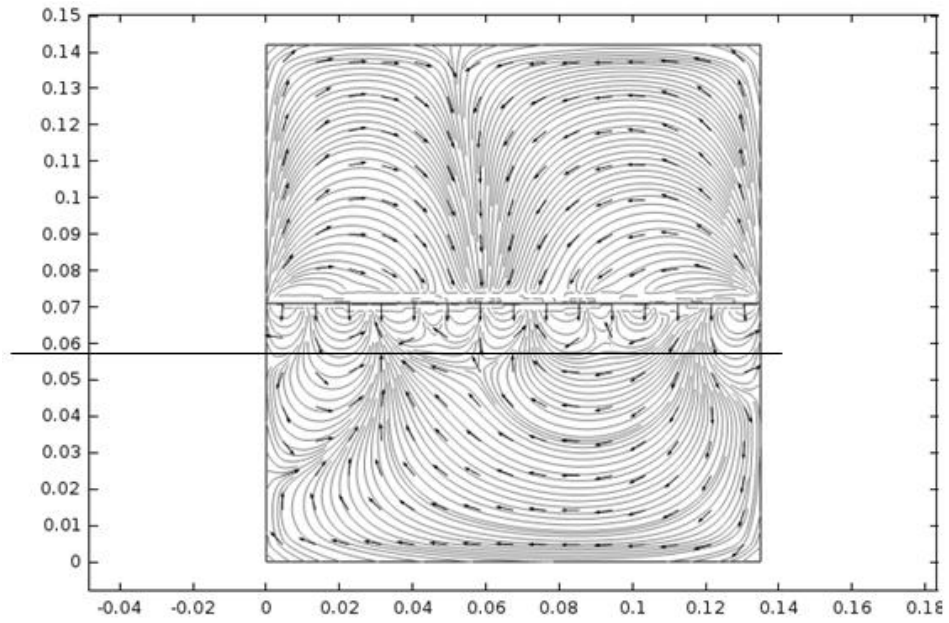
7.1 Cas Acide en excès



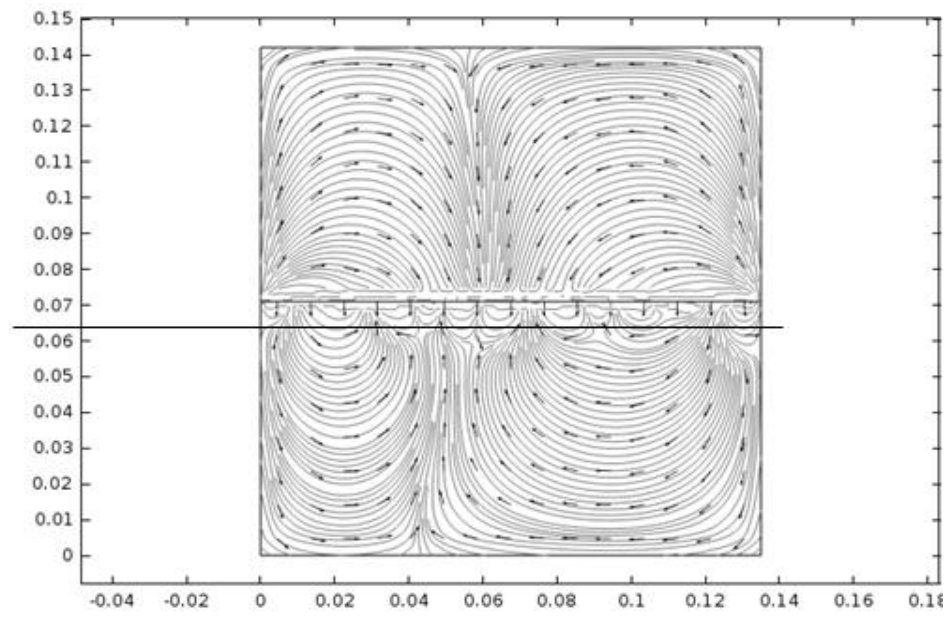
$$C_{02} / C_{01} = 0.5/0.5 = 1$$



$$C_{02} / C_{01} = 1/0.5 = 2$$



$$C_{02} / C_{01} = 1.5 / 0.5 = 3$$



$$C_{02} / C_{01} = 2 / 0.5 = 4$$

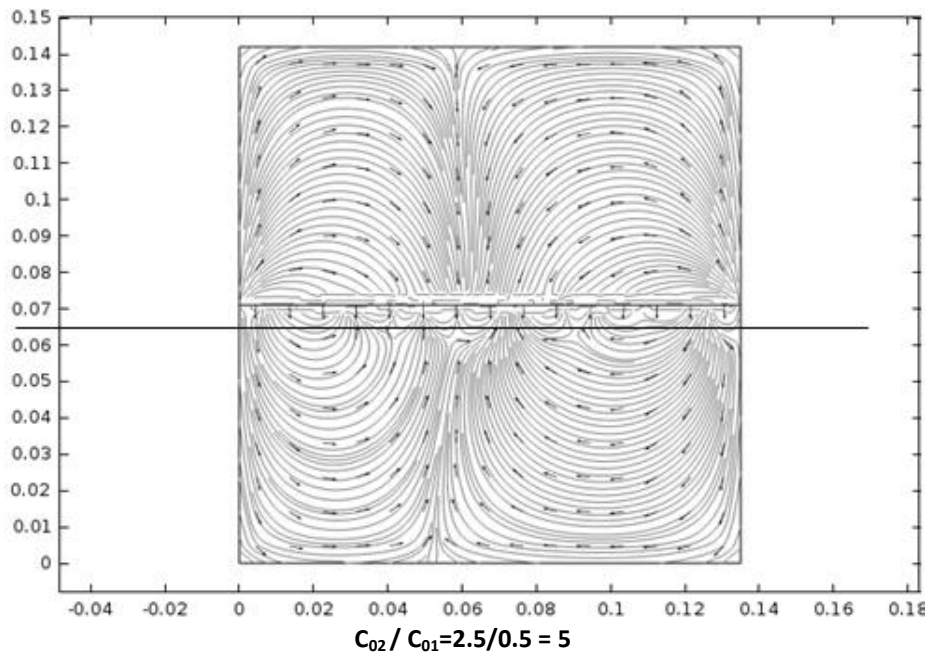


Figure 4.15: Lignes de courant pour différent rapport de concentration (Da=1)

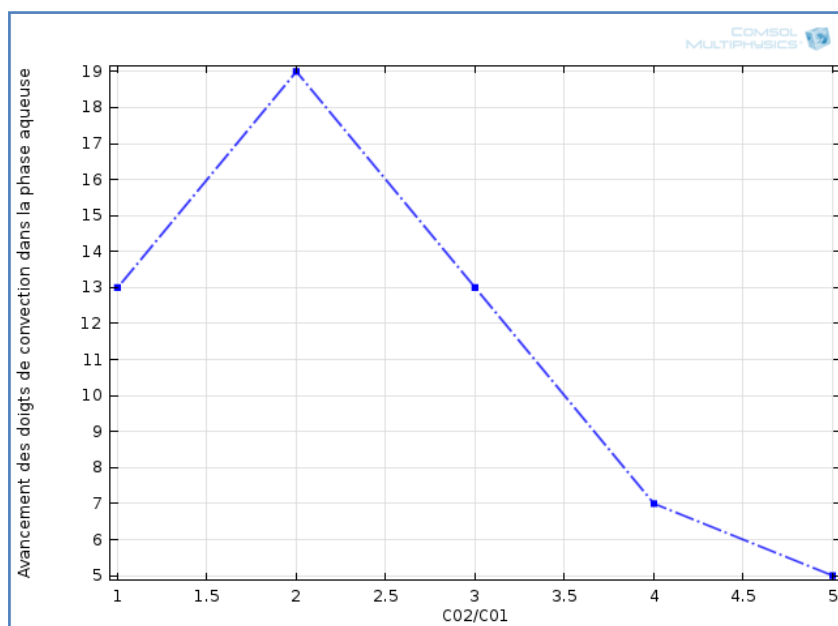
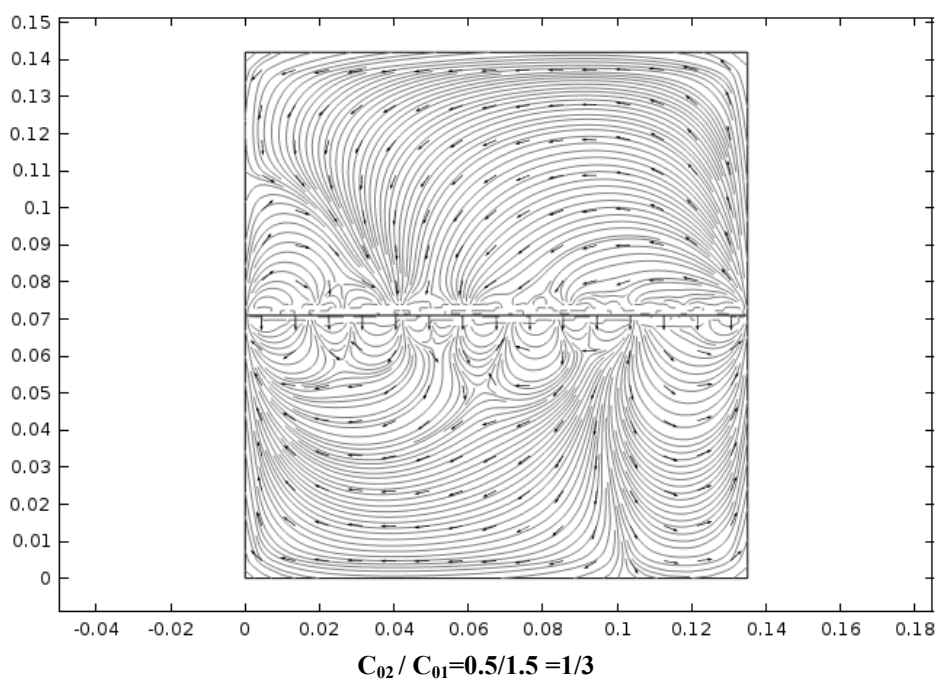
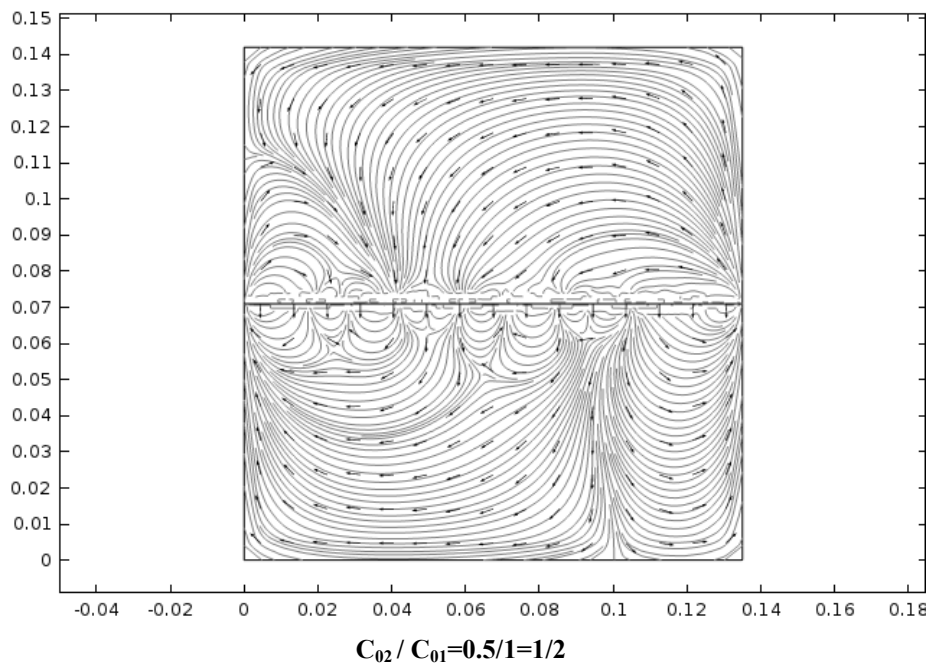


Figure 4.16 : Avancement des doigts de convection dans la phase aqueuse(en mm) en fonction du rapport des Concentrations initiales Acide/base

On observant la Figure 4.15, on remarque que plus le rapport C_{02}/C_{01} augmente, moins la dynamique est intense en dessous de l'interface (les doigts descendants). Aussi plus l'acide est en excès plus l'avancement des doigts dans la phase inférieure est réduit (Figure 4.16). Ceci peut être expliqué par le fait que quand l'acide est en excès, il ne rencontre pas assez

de base pour réagir et diffuse dans la majeure partie de la couche inférieure. Cet acide réagit avec la base ce qui génère un gradient de concentration (de base) qui permet l'apparition d'une autre dynamique sous forme de deux cellules contrarotatives ($C_{02}/C_{01}=4$ et $C_{02}/C_{01}=5$). Ce résultat est en bon accord avec les résultats expérimentaux aboutit en [3], [10].

7.2. Cas Base en excès



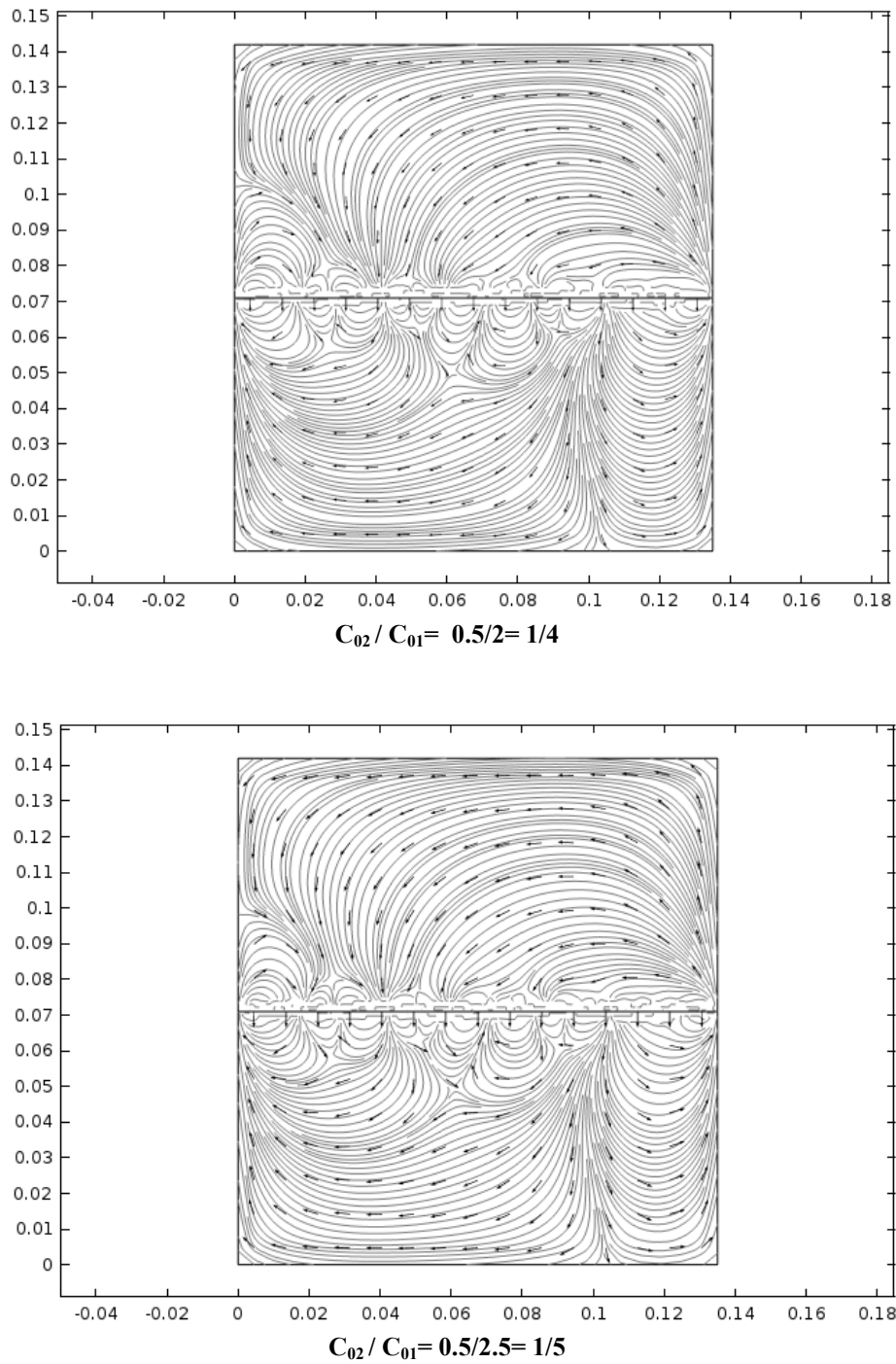


Figure 4.17: Modèles Chemo Convectifs formés dans la cellule pour différents rapports C_{02} / C_{01} , ($Da=1$)

Pour le cas où la base est en excès, on voit une forte dynamique en dessous de l'interface sous forme de doigts se dirigeant depuis l'interface vers la profondeur de la phase inférieure. En raison de la faible concentration de l'acide par rapport à celle de la base, dès qu'il diffuse vers la couche inférieure, il sera consommé rapidement par la réaction de

neutralisation et plus la concentration de base augmente plus les doigts de convection pénètrent dans la phase aqueuse.

La Figure 4.18 donne une comparaison des deux cas A et B, on remarque que le comportement du fluide est identique à celui obtenu au niveau des Figures 4.15 et 4.17. Pour un point dans la phase inférieure distant de 6mm de l'interface, le maximum de vitesse est atteint pour le cas B, ceci explique la forte dynamique observée dans ce cas.

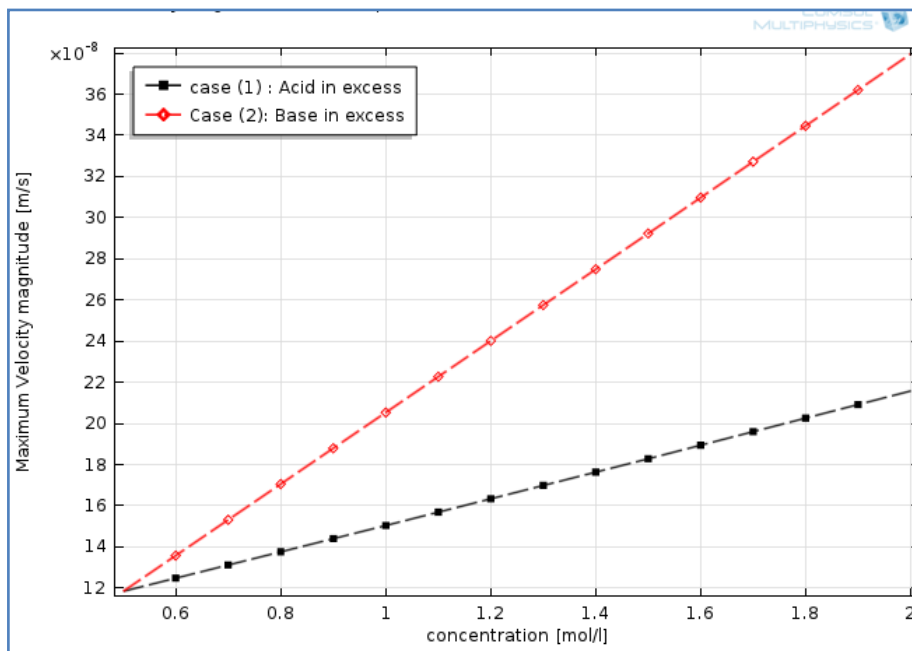
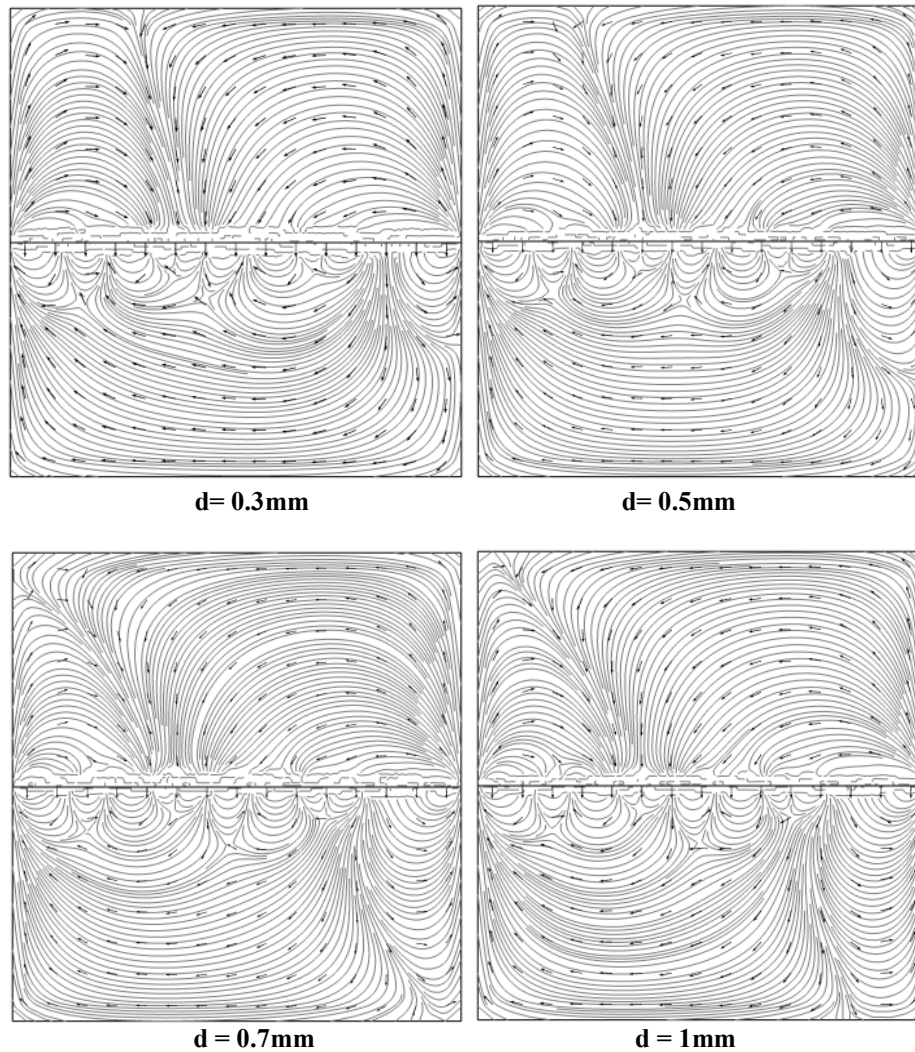


Figure 4.18: Variation de la vitesse maximale en [m/s] à un point distant de 6 mm sous l'interface à $t = 2s$ ($Da=1$, $C_{02}/C_{01}=1$)

8. Effet de l'espace entre les deux plaques

Dans la pratique on peut varier l'espace entre les deux plaques de la cellule de Hele Shaw en utilisant plusieurs feuilles de téflon avec plusieurs épaisseurs permettant d'ajuster d entre les valeurs désirées. Dans cette partie nous allons détecter l'effet de cette épaisseur sur les Schémas Chemo convectifs produits.



**Figure 4.19: Motifs Chemo Convectifs formés dans la cellule pour différentes valeurs de "d"
($Da=1$, $C_{02}/C_{01}=1$)**

Comme il est montré sur la Figure 4.19 la dynamique dans la phase aqueuse est plus intense pour des valeurs de "d" décroissante. Ceci nous laisse conclure que les cellules avec les petits espaces décrivent le mieux les phénomènes Chemo hydrodynamiques.

9. Effet de la chimie

L'objectif principal de cette thèse résidait dans l'élaboration d'un modèle capable de décrire l'écoulement produit du couplage des instabilités hydrodynamiques induites par la flottabilité et d'une réaction de neutralisation, donc il serait nécessaire d'inspecter l'impact de chaque phénomène sur l'autre, ceci ne peut être possible que par le biais du nombre de

Damköhler (Da) qui mesure le rapport du temps caractéristique convectif au temps caractéristique chimique.

La Figure 4.20 illustre l'influence des deux effets chimique et hydrodynamique sur l'avancement (en mm) des doigts de convection.

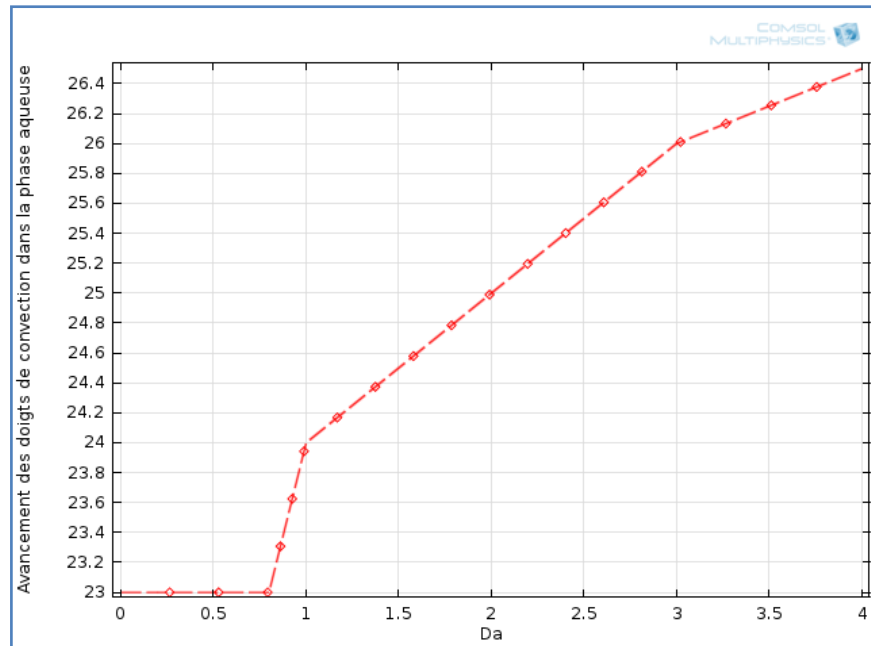


Figure 4.20 : Avancement des doigts de convection en fonction du nombre de Damköhler

Plusieurs valeurs de Da ont été utilisées, pour les valeurs inférieures à 1 c.à.d. quand la chimie joue un rôle mineur, la réaction est lente et l'écoulement en dessous l'interface est lent (Figure 4.21), la dynamique est similaire à celle obtenue en absence de réaction ($Da = 0$: cas instable de réactifs frais = transfert de masse pure).

Pour les valeurs de $Da \geq 1$, la chimie joue un rôle majeur et la réaction se produit rapidement, les doigts de convection atteignent leurs maximums. La Figure 4.21 montre la variation temporelle de l'intensité de la vitesse en un point dans la phase inférieure distant de 1 mm de l'interface, on voit clairement que plus Da augmente plus la vitesse augmente : la chimie accélère l'écoulement ce qui avance les doigts profondément dans la phase aqueuse.

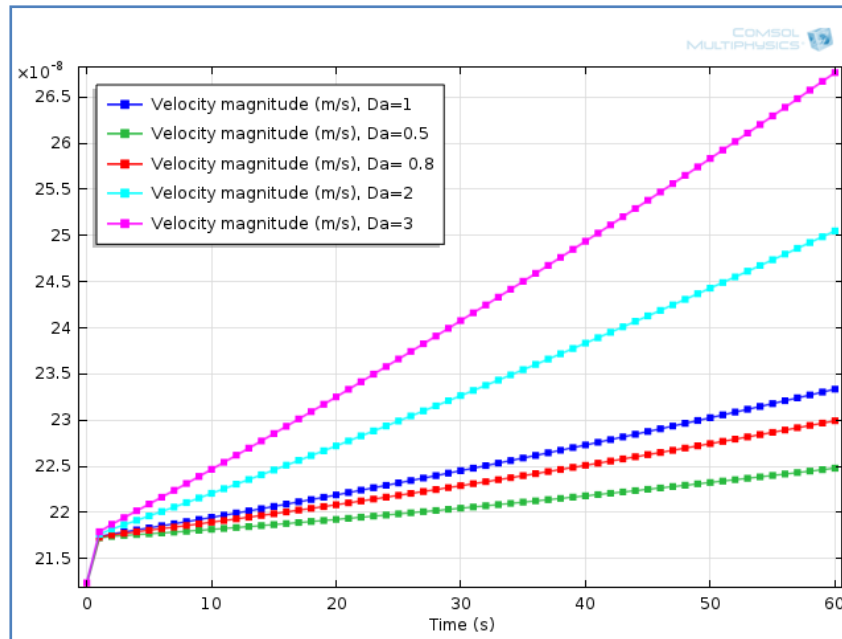


Figure 4.21: Evolution temporelle de l'intensité de la vitesse en un point distant de 1mm de l'interface dans la phase aqueuse en fonction du nombre de Damköhler

10. Conclusion

A la fin de ce chapitre nous pouvons dire que notre modèle a reproduit d'une façon acceptable les instabilités générées dans la cellule de Hele Shaw. L'évolution temporelle des motifs Chemo convectifs donne une idée très claire sur le développement de l'instabilité. Une étude paramétrique a été effectuée et cela en vérifiant l'effet du rapport des concentrations initiales, l'effet de gravité, l'effet de l'espace entre les deux plaques et l'effet de la chimie sur cette instabilité. Les conclusions détaillées obtenues à partir de toutes ces simulations seront exposées dans la section suivante.

Références Bibliographique Du Quatrième Chapitre

- [1] C. Almarcha, P. M. J. Trevelyan, P. Grosfils, A. De Wit, (2010), “Chemically driven hydrodynamic instabilities”, *Physical Review Letters*, Vol. 104, Article ID 044501.
- [2] A. De Wit, (2020), “Chemo-hydrodynamic patterns and instabilities”, *Annual Review of Fluid Mechanics*, Vol. 52, pp. 531-555.
- [3] K. Eckert, M. Acker, Y. Shi, (2004), “Chemical pattern formation driven by a neutralization reaction. I. Mechanism and basic features”, *Physics of Fluids*, Vol. 16, No. 2, pp. 385-399.
- [4] A. Grahn, K. Eckert, (1999), “Plume and finger regimes driven by an exothermic interfacial reaction”, *Physical Review Letters*, Vol. 82, pp. No. 22, 4436–4439.
- [5] C. Almarcha, P. M. J. Trevelyan, P. Grosfils, A. De Wit, (2010), “Chemically driven hydrodynamic instabilities”, *Physical Review Letters*, Vol. 104, Article ID 044501.
- [6] C. Almarcha, P. M. J. Trevelyan, P. Grosfils, A. De Wit, (2013), “Thermal effects on the diffusive layer convection instability of an exothermic acid-base reaction front”, *Physical Review E, Covering Statistical, Nonlinear, Biological, and Soft Matter Physics*, Vol. 88, Article ID 033009.
- [7] D. A. Bratsun, “On Rayleigh-Benard mechanism of alignment of salt fingers in reactive immiscible two-layer systems”, (2014), *Microgravity Science and Technology*, Vol. 26 No. 5, pp. 293-303.
- [8] D. A. Bratsun, Y. Shi, K. Eckert, A. De Wit, (2005), “Control of chemohydrodynamic pattern formation by external localized cooling”. *Europhysics Letters*, Vol. 69, No. 5, pp. 746–752.
- [9] Y. Shi, K. Eckert, (2006), “Acceleration of reaction fronts by hydrodynamic instabilities in immiscible systems”, *Chemical Engineering Science*, Vol. 61, No. 17, pp. 5523-5533.

- [10] D. Bratsun, A. De Wit, (2011), "Buoyancy-driven pattern formation in reactive immiscible two-layer systems", *Chemical Engineering Science*, 66, 5723–5734.

Conclusion générale

Conclusion générale

Dans ce travail, nous nous sommes focalisés sur l'étude des instabilités Chemo hydrodynamiques qui se produisent quand deux réactifs sont mis en contact dans un réacteur type cellule de Hele Shaw, dans le champ de la gravité. En effet ce phénomène est induit par le couplage entre réaction chimique et instabilité hydrodynamique.

Nous avons essayé de progresser dans la compréhension de ces phénomènes physiques en décrivant et en étudiant tout les paramètres caractérisant les différents modèles Chemo-hydrodynamiques qui peuvent se former dans un système à deux couches liquide, immiscibles, superposées dans une cellule de Hele Shaw disposée verticalement.

Le système d'équations gouvernant le problème est résolu numériquement à l'aide du code commercial Comsol MultiPhysics 4.3 qui est un logiciel de simulation numérique basé sur la méthode des éléments finis. Au deuxième chapitre nous avons présenté la modélisation mathématique de l'écoulement Chemo-convectif dans une cellule de Hele Shaw et nous avons montré qu'il est analogue à un milieu poreux pour des faibles valeurs de d (≤ 1) et pour une position de cellule verticale.

Nous avons validé nos calculs par deux cas test exposés au chapitre 03 et la comparaison des résultats a laissé voir la bonne performance du logiciel, il converge rapidement vers une solution précise. Nous avons vérifié l'effet du maillage sur nos calculs pour enfin choisir la grille adéquate adoptée et utilisée dans le chapitre 04.

Dans la perspective de détailler l'étude sur le phénomène produit dans la cellule de Hele Shaw, nous avons commencé notre étude par l'examen de l'évolution temporelle de l'instabilité Chemo convective. Cette instabilité a pris deux aspects différents: celui produit dans la phase organique supérieure et celui produit dans la phase aqueuse inférieure. Dans la phase supérieure, ce sont les mécanismes de la convection de la couche diffusive accompagné de celui de Raleigh-Bénard qui génèrent des cellules contrarotatives.

À l'interface, dès que l'acide commence sa diffusion vers la phase aqueuse, des zones de mélange instables se forment et la structure de l'écoulement n'est pas bien déterminée. Après quelques secondes des doigts envahissent la phase inférieure, l'acide ainsi diffus se réagit avec la base en libérant de la chaleur et en déclenchant l'instabilité de Rayleigh-Bénard. Le front de réaction porte l'autre partie d'acide dans la majeure partie de la couche aqueuse qui réagira de nouveau avec la base, créant un gradient de concentration, ceci explique le mouvement ascendant des couches fluides inférieures.

Après, une étude paramétrique a été effectuée et cela afin de vérifier l'influence des: (1) rapport des concentrations initiales acide/base, (2) la gravité (3) l'espace entre les deux plaques et (4) la chimie, sur nos résultats.

Les conclusions tirées de cette étude peuvent être formulées comme suit :

- La diffusion continue de l'acide à partir de la phase organique dans la phase aqueuse est le facteur moteur derrière toute dynamique dans la cellule. En réalité, la diffusion cause la réaction de neutralisation, déclenche la convection de Rayleigh Bénard et provoque l'apparition du mécanisme de la convection de la couche diffusive dans la couche supérieure et des doigts convectifs dans la couche inférieure.
- Les motifs convectifs apparaissent assez rapidement dès que l'acide entre en contact avec la base, après moins d'une minute.
- La force de gravité joue un rôle majeur dans le déclenchement et l'accélération des instabilités une fois que la réaction aura lieu.
- L'augmentation du rapport de concentration initial acide/base qui signifie un excès d'acide ne favorise pas la génération des instabilités Chemo-hydrodynamiques et donc freine le front de réaction. En revanche, une diminution de ce rapport qui signifie un excès de base favorise une forte dynamique sous l'interface et allonge la zone de réaction.

- Pour des valeurs faibles de "d" (≤ 1) la dynamique dans la cellule est plus intense, ceci nous laisse conclure que les cellules avec les petits espaces décrivent le mieux les phénomènes Chemo hydrodynamiques.
- La structure et la dynamique de l'instabilité Chemoconvective dépend fortement du raffinement de maillage.
- Quand la chimie joue un rôle mineur, la dynamique est similaire à celle obtenue en cas d'un pur transfert de masse.
- Quand la chimie joue un rôle majeur, les doigts de convection atteignent leurs maximums et la vitesse de l'écoulement augmente.
- Les solutions numériques, obtenues à l'aide du logiciel COMSOL MultiPhysics, semblent bien reproduire l'instabilité Chemo hydrodynamique dans la cellule de Hele-Shaw et peuvent être considérées plus que satisfaisantes. Les différences entre nos solutions numériques et celles obtenues expérimentalement (Eckert et Grahn 1999) et (Eckert et al 2004) sont principalement et souvent créées artificiellement par des oscillations numériques introduites par la méthode des éléments finis utilisée par COMSOL et des tolérances absolue et relative des solveurs utilisés dans la résolution des équations modélisantes.

En Perspectives

Nous pouvons dire que cette thématique très riche nécessite beaucoup d'études détaillées dans différents aspects. L'étude proposée dans cette thèse peut être prolongée de diverses façons. Il serait sans doute opportun de considérer l'effet de la tension superficielle à l'interface liquide-liquide ou de reformuler le problème en 3D rendant l'écoulement non-Darcien.

Références Bibliographiques

Chapitre N01 : Synthèse Bibliographique

- [1] François Charru, (2007), "Instabilités hydrodynamiques", EDP Sciences/CNRS ÉDITION.

- [2] D. Bratsun, A. De Wit, (2011), "Buoyancy-driven pattern formation in reactive immiscible two-layer systems", *Chemical Engineering Science*, 66, 5723–5734.

- [3] Anne De Wit, (2003), Fingering of chemical fronts, Thèse présentée en vue de l'obtention du grade d'Agrégée de l'Enseignement Supérieur de la Faculté des Sciences de l'Université Libre de Bruxelles.

- [4] Rawad Tadmouri, (2010), "Tensioactifs en système biphasique eau/huile: propriétés, transfert et instabilité de Marangoni", Thèse de Doctorat, Université Toulouse III - Paul Sabatier.

- [5] Dugald Komla Agble, (1989), "Interfacial Mass Transfer in Binary Liquid-Liquid Systems With Added Surfactants", Thèse de Doctorat, Université de Londres.

- [6] Loujaine Yacine, (2015), " Étude de la séparation thermo gravitationnelle en milieu fluide ou poreux dans une enceinte soumise à des flux thermiques croisés", Thèse de Doctorat, Université Toulouse III - Paul Sabatier.

- [7] F. Sagués, Irving R. Epstein, (2003), "Nonlinear chemical dynamics", *Dalton Trans.*, pp 1201–1217.

- [8] S. Kalliadasis, J. Yang, (2004), "Fingering instabilities of exothermic reaction-diffusion fronts in porous media", *Physics of Fluids Volume 16, Number 5*.

- [9] L. Lemaigre, M. A. Budroni, L. A. Riolfo, P. Grosfils, A. De Wit, (2013), "Digitation de densité asymétrique dans les systèmes réactifs", Non Linéaire Publications, Avenue de l'Université, BP 12, 76801 Saint-Etienne du Rouvray cedex.

- [10] L. Lemaigre, M. A. Budroni, L. A. Riolfo, P. Grosfils, A. De Wit, (2013), "Asymmetric Rayleigh-Taylor and double-diffusive fingers in reactive systems", *Physics Of Fluids* 25, 014103.
- [11] A. Burlot, (2015), "Étude et modélisation de la turbulence homogène stratifiée instable", Thèse de Doctorat, Université de Lyon.
- [12] Shyam Sunder Gopalakrishnan, Jorge Carballido-Landeira, Anne De Wit, Bernard Knaepen, (2015), 15th European Turbulence Conference, 25-28 August, Delft, The Netherland.
- [13] C. Almarcha, Y. R'Honi, Y. De Decker, P. M. J. Trevelyan, K. Eckert, A. De Wit, (2011), "Convective Mixing Induced by Acid Base Reactions", *The Journal of Physical Chemistry B*.
- [14] J. D'hernoncourt, A. De Wit, A. Zebib, (2007), "Double-diffusive instabilities of autocatalytic chemical fronts", *Journal of Fluid Mechanics*, vol. 576, pp. 445–456.
- [15] J. Carballido-Landeira, P. M. J. Trevelyan, C. Almarcha, A. De Wit, (2013), "Mixed-mode instability of a miscible interface due to coupling between Rayleigh-Taylor and double-diffusive convective modes", *Physics Of Fluids* 25, 024107.
- [16] S. Kalliadasis, J. Yang, A. De Wit, (2004), "Fingering instabilities of exothermic reaction-diffusion fronts in porous media", *Physics of Fluids*, Vol.16, Numéro 5.
- [17] D. A. Bratsun, E. V. Aitova, K. Kostarev, A. Mizev, E. A. Mosheva, (2016), "Convective Instability in a Two-Layer System of Reacting Fluids with Concentration-Dependent Diffusion", *Journal of Applied Mechanics and Technical Physics*, Vol. 57, No. 7, pp. 1226–1238.
- [18] De Wit, K. Eckert, S. A. Kalliadasis, (2012), "Introduction to the Focus Issue: Chemo-Hydrodynamic Patterns and Instabilities", *CHAOS* 22, 037101.
- [19] J. Yang, A. D'Onofrio, S. Kalliadasis, A. De Wit, (2002), "Rayleigh–Taylor instability of reaction-diffusion acidity fronts", *J. Chem. Phys.* Volume 117, Numéro 20, 9395.
- [20] C. Almarcha, P. M. J. Trevelyan, P. Grosfils, A. De Wit, (2010), "Chemically Driven Hydrodynamic Instabilities", *Physical Review Letters*, PRL 104, 044501.

- [21] E. V. Aitova, D. A. Bratsun, K. G. Kostarev, A. I. Mizev et E. A. Mosheva, (2016), "Convective Instability in a Two-Layer System of Reacting Fluids with Concentration-Dependent Diffusion", *Journal of Applied Mechanics and Technical Physics*, Vol. 57, No. 7, pp. 1226–1238.
- [22] D. A. Bratsun, (2014), "On Rayleigh-Benard mechanism of alignment of salt fingers in reactive immiscible two-layer systems", *Microgravity Science and Technology*, Vol. 26 No. 5, pp. 293-303.
- [23] C. V. Sternling, L. E. Scriven, " Interfacial turbulence: Hydrodynamic instability and the Marangoni effect", (1959), *American Institute of Chemical Engineers Journals*, volume 4, issue 4, pp 514-523.
- [24] D. A. Bratsun, A. De Wit, (2004), " On Marangoni convective patterns driven by an exothermic chemical reaction in two-layer systems", *Physics Of Fluids*, Vol. 16, No. 4.
- [25] S. Ying, K. Eckert, (2007), "Orientation-dependent Hydrodynamic Instabilities from Chemo-Marangoni Cells to Large Scale Interfacial Deformations", *Chinese Journal of Chemical Engineering*, 15 (5) 748.
- [26] M. A. Mendes-Tatsis, E. S. Perez De Ortiz, (1996), " Marangoni Instabilities In Systems With An Interfacial Chemical Reaction", *Chemical Engineering Science*, Vol. 51, No. 15, pp. 3755-3761.
- [27] I. R. Epstein, J. A. Pojman, (1998), "An Introduction to Nonlinear Chemical Dynamics: Oscillations, Waves, Patterns, and Chaos", Oxford University Press: New York.
- [28] K. Eckert, A. Grahn, (1999), "Plume and Finger Regimes Driven by an Exothermic Interfacial Reaction", In: *Physical Review Letters* 82, S. 4436–4439
- [29] R. Texier-Picard, J. A. Pojman et Vit. A. Volpert, (2000), "Effect of interfacial tension on propagating polymerization fronts", *Chaos*, Volume 10, Number 1.
- [30] A. Nepomnyashchy, I. Simanovskii, L. Braverman, (2001), "Stability of thermocapillary flows with inclined temperature gradient", *Journal of fluid mechanics*, Volume 442, pp 141-155.

- [31] M. A. Bees, A. J. Pons, P. G. Sørensen, F. Sagués, (2001), "Chemo convection: A chemically driven hydrodynamic instability", *Journal Of Chemical Physics*, Volume 114, Numero 4.
- [32] D. A. Bratsun, A. De Wit, (2004), "On Marangoni convective patterns driven by an exothermic chemical reaction in two-layer systems", *PHYSICS OF FLUIDS VOLUME 16, NUMBER 4*
- [33] D. A. Bratsun, Y. Shi, K. Eckert et A. De Wit, (2005),"Control of chemo-hydrodynamic pattern formation by external localized cooling", *Europhys. Lett.*, 69 (5), pp. 746–752.
- [34] Y. Shi, K. Eckert, (2006),"Acceleration of reaction fronts by hydrodynamic instabilities in immiscible systems", *Chemical Engineering Science* 61, 5523 – 5533.
- [35] Y. Shi, K. Eckert, (2007)," Orientation-dependent Hydrodynamic Instabilities from Chemo-Marangoni Cells to Large Scale Interfacial Deformations", *Chinese Journal of Chemical Engineering*, 15(5), pp. 748-753.
- [36] D. A. Bratsun, A. De Wit, (2008), "Control of Chemoconvective Structures in a Slab Reactor", *Technical Physics*, Vol. 53, No. 2, pp. 146–153.

Chapitre N02: Analyse Mathématique

- [1] K. Eckert and A. Grahn, (1999), "Plume and finger regimes driven by a exothermic interfacial reaction", *Physical Review Letters* 82, S. 4436–4439.
- [2] K. Eckert, M. Acker, Y. Shi, (2004), "Chemical pattern formation driven by a neutralization reaction. I. Mechanism and basic features", *Phys. Fluids* 16, 385.
- [3] D. Bratsun, A. De Wit, (2011),"Buoyancy-driven pattern formation in reactive immiscible two-layer systems", *Chemical Engineering Science*, 66, 5723–5734.

- [4] J.Martin, N. Rakotomalala, D. Salin, M. Böckmann, (2002), "Buoyancy-driven instability of an autocatalytic reaction front in a Hele-Shaw cell", *Physical Review E*, Volume 65, 051605.
- [5] Renaud Maes, (2009), "Etude expérimentale de la digitation visqueuse de fluides miscibles en cellule de Hele-Shaw", Thèse de Doctorat, Université Libre de Bruxelles.
- [6] Hung Truong Trieu, (2011), "Etudes théorique et expérimentale du transport de fluides miscibles en cellule Hele-Shaw", Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique De Lorraine.
- [7] Anne De Wit, (2003), "Fingering of chemical fronts", Thèse présentée en vue de l'obtention du grade d'Agrégée de l'Enseignement Supérieur de la Faculté des Sciences de l'Université Libre de Bruxelles.
- [8] Jon Mainhagu, (2009), "Transport de fluides miscibles à propriétés physiques variables en cellule Hele-Shaw. Comparaisons entre simulations numériques et mesures par LIF", Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine.

Chapitre N03: Modèle Numérique

- [1] Franck Pigeonneau, (2011), "Simulation numérique à l'échelle macroscopique par la méthode des éléments finis", *Surface du verre et Interfaces*, UMR 125 CNRS/Saint-Gobain.
- [2] Grégoire Allaire, (2012), "Analyse numérique et optimisation, Une introduction à la modélisation mathématique et à la simulation numérique", Éditions de l'École polytechnique.
- [3] David Manceau, "Analyse numérique des équations aux dérivées partielles : Introduction à la méthode des éléments finis", Université Le Havre.
- [4] Pierre Saramito, (2006), "Méthodes numériques avancées pour la résolution des équations aux dérivées partielles."

- [5] P. Le Quéré, B.Podvin, (2010),"Méthodes numériques pour les écoulements incompressibles".
- [6] G. De Vahl Davis, (1989),"Natural convection of air in a square cavity a bench mark numerical solution", International journal for numerical methods in fluids", Vol. 3, pp. 249-264.
- [7] Stewart et Weinberg, (1972)," Fluid flow in liquid metals: Experimental observations", Journal of Crystal Growth, Volume 12, Issue 3, Pages 228-238.
- [8] D. Villers, (1989),"Couplage entre les convections capillaire et thermogravitationnelle", Thèse de Doctorat, Université de Mons-Hainaut.
- [9] D.Villers, J.K.Platten (1992),"Coupled buoyancy and Marangoni convection in acetone: experiments and comparison with numerical simulations", J. Fluid Mech. Vol. 234, pp. 487-510.
- [10] Rawad Tadmouri, (2011),"Tensioactifs en système biphasique eau/huile: propriétés, transfert et instabilité de Marangoni", Thèse de Doctorat, Université Toulouse III - Paul Sabatier

Chapitre 04: Résultats et interprétations

- [1] C. Almarcha, P. M. J. Trevelyan, P. Grosfils, A. De Wit, (2010), "Chemically driven hydrodynamic instabilities", Physical Review Letters, Vol. 104, Article ID 044501.
- [2] A. De Wit, (2020), "Chemo-hydrodynamic patterns and instabilities", Annual Review of Fluid Mechanics, Vol. 52, pp. 531-555.
- [3] K. Eckert, M. Acker, Y. Shi, (2004), "Chemical pattern formation driven by a neutralization reaction. I. Mechanism and basic features", Physics of Fluids, Vol. 16, No. 2, pp. 385-399.
- [4] A. Grahn, K. Eckert, (1999), "Plume and finger regimes driven by an exothermic interfacial reaction", Physical Review Letters, Vol. 82, pp. No. 22, 4436–4439.

- [5] C. Almarcha, P. M. J. Trevelyan, P. Grosfils, A. De Wit, (2010), "Chemically driven hydrodynamic instabilities", *Physical Review Letters*, Vol. 104, Article ID 044501.
- [6] C. Almarcha, P. M. J. Trevelyan, P. Grosfils, A. De Wit, (2013), "Thermal effects on the diffusive layer convection instability of an exothermic acid-base reaction front", *Physical Review E, Covering Statistical, Nonlinear, Biological, and Soft Matter Physics*, Vol. 88, Article ID 033009.
- [7] D. A. Bratsun, "On Rayleigh-Benard mechanism of alignment of salt fingers in reactive immiscible two-layer systems", (2014), *Microgravity Science and Technology*, Vol. 26 No. 5, pp. 293-303.
- [8] D. A. Bratsun, Y. Shi, K. Eckert, A. De Wit, (2005), "Control of chemohydrodynamic pattern formation by external localized cooling". *Europhysics Letters*, Vol. 69, No. 5, pp. 746–752.
- [9] Y. Shi, K. Eckert, "Acceleration of reaction fronts by hydrodynamic instabilities in immiscible systems", *Chemical Engineering Science*, Vol. 61, No. 17, pp. 5523-5533, 2006.
- [10] D. Bratsun, A. De Wit, (2011), "Buoyancy-driven pattern formation in reactive immiscible two-layer systems", *Chemical Engineering Science*, 66, 5723–5734.

