Etude et résolution numérique d'un problème d'aérothermochimie

Jean-Edouard Mazille

▶ **To cite this version:**

Jean-Edouard Mazille. Etude et résolution numérique d'un problème d'aérothermochimie. Modélisation et simulation. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 1973. Français. NNT : . tel-00283964

HAL Id: tel-00283964
https://theses.hal.science/tel-00283964

Submitted on 2 Jun 2008

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

N° d'ordre :

THÈSE

présentée

A L'UNIVERSITÉ SCIENTIFIQUE ET MÉDICALE DE GRENOBLE

pour obtenir

LE TITRE DE DOCTEUR DE SPÉCIALITÉ (3e CYCLE)

Spécialité : MATHÉMATIQUES APPLIQUÉES

Mention : ANALYSE NUMÉRIQUE

PAR

Jean-Edouard MAZILLE

SUJET

Étude et résolution numérique d'un problème d'aérothermochimie

---

Soutenue le 5 Décembre 1973, devant la Commission d'Examen

JURY

MM. N. GASTINEL	*Président*
Y. CHAPRON	*Examinateurs*
A. CRAYA	
F. ROBERT	
P. VERNIER	*Invité*

UNIVERSITE SCIENTIFIQUE
ET MEDICALE DE GRENOBLE

LISTE DES PROFESSEURS

Président : Monsieur Michel SOUTIF
Vice-Président : Monsieur Gabriel CAU

PROFESSEURS TITULAIRES

MM.	ANGLES D'AURIAC Paul	Mécanique des fluides
	ARNAUD Georges	Clinique des maladies infectieuses
	ARNAUD Paul	Chimie
	AUBERT Guy	Physique
	AYANT Yves	Physique approfondie
Mme	BARBIER Marie-Jeanne	Electrochimie
MM.	BARBIER Jean-Claude	Physique expérimentale
	BARBIER Reynold	Géologie appliquée
	BARJON Robert	Physique nucléaire
	BARNOUD Fernand	Biosynthèse de la cellulose
	BARRA Jean-René	Statistiques
	BARRIE Joseph	Clinique chirurgicale
	BEAUDOING André	Pédiatrie
	BENOIT Jean	Radioélectricité
	BERNARD Alain	Mathématiques Pures
Mme	BERTRANDIAS Françoise	Mathématiques Pures
MM.	BESSON Jean	Electrochimie
	BEZES Henri	Chirurgie générale
	BLAMBERT Maurice	Mathématiques Pures
	BOLLIET Louis	Informatique (IUT B)
	BONNET Georges	Electrotechnique
	BONNET Jean-Louis	Clinique ophtalmologique
	BONNETAIN Lucien	Chimie minérale
	BONNET-EYMARD Joseph	Pathologie médicale
	BONNIER Etienne	Electrochimie Electrométallurgie
	BOUCHERLE André	Chimie et Toxicologie
	BOUCHEZ Robert	Physique nucléaire
	BOUSSARD Jean-Claude	Mathématiques Appliquées
	BRAVARD Yves	Géographie
	BRISSONNEAU Pierre	Physique du Solide
	BUYLE-BODIN Maurice	Electronique
	CABANAC Jean	Pathologie chirurgicale
	CABANEL Guy	Clinique rhumatologique et hydrologie
	CALAS François	Anatomie
	CARRAZ Gilbert	Biologie animale et pharmacodynamie
	CAU Gabriel	Médecine légale et Toxicologie
	CAUQUIS Georges	Chimie organique
	CHABAUTY Claude	Mathématiques Pures
	CHARACHON Robert	Oto-Rhino-Laryngologie
	CHATEAU Robert	Thérapeutique
	CHENE Marcel	Chimie papetière
	CHIBON Pierre	Biologie animale
	COEUR André	Pharmacie chimique
	CONTAMIN Robert	Clinique gynécologique
	COUDERC Pierre	Anatomie Pathologique
	COUMES André	Radioélectricité
	CRAYA Antoine	Mécanique
Mme	DEBELMAS Anne-Marie	Matière médicale
MM.	DEBELMAS Jacques	Géologie générale
	DEGRANGE Charles	Zoologie
	DEPORTES Charles	Chimie minérale
	DESRE Pierre	Métallurgie
	DESSAUX Georges	Physiologie animale

PROFESSEURS ASSOCIES

MM. CHEEKE John	Thermodynamique
GILLESPIE John	I.S.N.
ROCKAFELLAR Ralph	Mathématiques appliquées
WOHLFARTH Erich	Physique du solide

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM. BELORIZKY Elie	Physique
BENZAKEN Claude	Mathématiques appliquées
BERTRANDIAS Jean-Paul	Mathématiques appliquées
BIAREZ Jean-Pierre	Mécanique
Mme BONNIER Jane	Chimie générale
MM. CARLIER Georges	Biologie végétale
COHEN Joseph	Electrotechnique
DEPASSEL Roger	Mécanique des Fluides
DURAND Francis	Métallurgie
GAUTHIER Yves	Sciences biologiques
GAUTRON René	Chimie
GIDON Paul	Géologie et Minéralogie
GLENAT René	Chimie organique
HACQUES Gérard	Calcul numérique
IDELMAN Simon	Physiologie animale
JANIN Bernard	Géographie
JOLY Jean-René	Mathématiques pures
JULLIEN Pierre	Mathématiques appliquées
Mme KAHANE Josette	Physique
MM. MAYNARD Roger	Physique du solide
MULLER Jean-Michel	Thérapeutique
PERRIAUX Jean-Jacques	Géologie et minéralogie
PFISTER Jean-Claude	Physique du solide
PIERY Yvette	Physiologie animale
POULOUJADOFF Michel	Electrotechnique
REBECQ Jacques	Biologie (CUS)
REVOL Michel	Urologie
REYNOND Jean-Charles	Chirurgie générale
ROBERT André	Chimie papetière
SARRAZIN Roger	Anatomie et chirurgie
SARROT-REYNAULD Jean	Géologie
SIBILLE Robert	Construction Mécanique
SIROT Louis	Chirurgie générale
Mme SOUTIF Jeanne	Physique générale
MM. VIALON Pierre	Géologie
VAN CUTSEM Bernard	Mathématiques appliquées
ZADWORNY François	Electronique

MAITRES DE CONFERENCES ET MAITRES DE CONFERENCES AGREGES

Mle AGNIUS-DELORD Claudine	Physique pharmaceutique
ALARY Josette	Chimie analytique
MM. AMBLARD Pierre	Dermatologie
AMBROISE-THOMAS Pierre	Parasitologie
ARMAND Yves	Chimie

MM.	DODU Jacques	Mécanique appliquée
	DOLIQUE Jean-Michel	Physique des plasmas
	DREYFUS Bernard	Thermodynamique
	DUCROS Pierre	Cristallographie
	DUGOIS Pierre	Clinique de Dermatologie et Syphiligraphie
	FAU René	Clinique neuro-psychiatrique
	FELICI Noël	Electrostatique
	GAGNAIRE Didier	Chimie physique
	GALLISSOT François	Mathématiques Pures
	GALVANI Octave	Mathématiques Pures
	GASTINEL Noël	Analyse numérique
	GAVEND Michel	Pharmacologie
	GEINDRE Michel	Electroradiologie
	GERBER Robert	Mathématiques Pures
	GERMAIN Jean-Pierre	Mécanique
	GIRAUD Pierre	Géologie
	KAHANE André	Physique générale
	KLEIN Joseph	Mathématiques Pures
	KOSZUL Jean-Louis	Mathématiques Pures
	KRAVTCHENKO Julien	Mécanique
	KUNTZMANN Jean	Mathématiques Appliquées
	LACAZE Albert	Thermodynamique
	LACHARME Jean	Biologie végétale
	LAJZEROWICZ Joseph	Physique
	LATREILLE René	Chirurgie générale
	LATURAZE Jean	Biochimie pharmaceutique
	LAURENT Pierre	Mathématiques Appliquées
	LEDRU Jean	Clinique médicale B
	LLIBOUTRY Louis	Géophysique
	LONGEQUEUE Jean-Pierre	Physique nucléaire
	LOUP Jean	Géographie
Mle	LUTZ Elisabeth	Mathématiques Pures
	MALGRANGE Bernard	Mathématiques Pures
	MALLIAS Yves	Clinique obstétricale
	MARTIN-NOEL Pierre	Seméiologie médicale
	MAZARE Yves	Clinique médicale A
	MICHEL Robert	Minéralogie et Pétrographie
	MOURIQUAND Claude	Histologie
	MOUSSA André	Chimie nucléaire
	NEEL Louis	Physique du Solide
	OZENDA Paul	Botanique
	PAUTHENET René	Electrotechnique
	PAYAN Jean-Jacques	Mathématiques Pures
	PEBAY-PEYROULA Jean-Claude	Physique
	PERRET René	Servomécanismes
	RASSAT André	Chimie systématique
	RENARD Michel	Thermodynamique
	REULOS René	Physique industrielle
	RINALDI Renaud	Physique
	ROGET Jean	Clinique de pédiatrie et de puériculture
	DE ROUGEMONT Jacques	Neurologie
	SANTON Lucien	Mécanique
	SEIGNEURIN Raymond	Microbiologie et Hygiène
	SENGEL Philippe	Zoologie
	SILBERT Robert	Mécanique des fluides
	SOUTIF Michel	Physique générale
	TANCHE Maurice	Physiologie
	TRAYNARD Philippe	Chimie générale
	VAILLANT François	Zoologie
	VALENTIN Jacques	Physique Nucléaire
	VAUQUOIS Bernard	Calcul électronique
Mme	VERAIN Alice	Pharmacie galénique

MM. BEGUIN Claude	Chimie organique
BILLET Jean	Géographie
BLIMAN Samuel	Electronique (EIE)
BLOCH Daniel	Electrotechnique
Mme BOUCHE Liane	Mathématiques (CUS)
MM. BOUCHET Yves	Anatomie
BOUVARD Maurice	Mécanique des Fluides
BRODEAU François	Mathématiques (IUT B)
BRUGEL Lucien	Energétique
BUISSON Roger	Physique
BUTEL Jean	Orthopédie
CHAMBAZ Edmond	Biochimie médicale
CHAMPETIER Jean	Anatomie et organogénèse
CHERADAME Hervé	Chimie papetière
CHIAVERINA Jean	Biologie appliquée (EFP)
COHEN-ADDAD Jean-Pierre	Spectrométrie physique
COLOMB Maurice	Biochimie médicale
CONTE René	Physique
COULOMB Max	Radiologie
CROUZET Guy	Radiologie
CYROT Michel	Physique du solide
DELOBEL Claude	M.I.A.G.
DUSSAUD René	Mathématiques (CUS)
Mme ETERRADOSSI Jacqueline	Physiologie
MM. FAURE Jacques	Médecine légale
FONTAINE Jean-Marc	Mathématiques Pures
GENSAC Pierre	Botanique
GIDON Maurice	Géologie
GRIFFITHS Michaël	Mathématiques Appliquées
GROULADE Joseph	Biochimie médicale
GUITTON Jacques	Chimie
HOLLARD Daniel	Hématologie
HUGONOT Robert	Hygiène et Médecine préventive
IVANES Marcel	Electricité
JALBERT Pierre	Histologie
JOUBERT Jean-Claude	Physique du Solide
KRAKOWIAK Sacha	Mathématiques appliquées
KUHN Gérard	Physique
LACOUME Jean-Louis	Physique
Mme LAJZEROWICZ Jeannine	Physique
MM. LANCIA Roland	Physique atomique
LE JUNTER Noël	Electronique
LEROY Philippe	Mathématiques
LOISEAUX Jean-Marie	Physique Nucléaire
LUU DUC Cuong	Chimie Organique
MACHE Régis	Physiologie végétale
MAGNIN Robert	Hygiène et Médecine préventive
MARECHAL Jean	Mécanique
MARTIN-BOUYER Michel	Chimie (CUS)
MICHOULIER Jean	Physique (I.U.T. "A")
MICOUD Max	Maladies infectieuses
MOREAU René	Hydraulique (INP)
NEGRE Robert	Mécanique
PARAMELLE Bernard	Pneumologie
PECCOUD François	Analyse (IUT B)
PEFFEN René	Métallurgie
PELMONT Jean	Physiologie animale
PERRET Jean	Neurologie
PERRIN Louis	Pathologie expérimentale
PHELIP Xavier	Rhumatologie

MM. RACHAIL Michel	Médecine interne
RACINET Claude	Gynécologie et obstétrique
RAYNAUD Hervé	M.I.A.G.
RENAUD Maurice	Chimie
RICHARD Lucien	Botanique
Mme RINAUDO Marguerite	Chimie macromoléculaire
MM. ROMIER Guy	Mathématiques (IUT B)
SHOM Jean Claude	Chimie Générale
STIEGLITZ Paul	Anesthésiologie
STOEBNER Pierre	Anatomie pathologique
VEILLON Gérard	Mathématiques Appliquées (INP)
VOOG Robert	Médecine interne
VROUSSOS Constantin	Radiologie

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES

MM. CRABLEE Pierre	C.E.R.M.O.
CURRIE Jan	Mathématiques appliquées
YACOUD Mahmoud	Médecine légale

CHARGES DE FONCTIONS DE MAITRES DE CONFERENCES

Mme BERIEL Hélène	Physiologie
Mme RENAUDET Jacqueline	Microbiologie

Fait le 1.10.73

REMERCIEMENTS

Cette thèse a été préparée au Laboratoire d'Etudes des Matériaux Minces, au Département de Métallurgie du Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble.

Je suis très reconnaissant à Monsieur SPITZ pour l'accueil qu'il m'y a réservé, et pour la confiance et les facilités qu'il m'a accordées.

Monsieur GASTINEL.a suivi de près cette étude dès le départ. Les discussions que j'ai eues avec lui m'ont beaucoup apporté, tant sur le plan des idées que sur le plan de la rigueur. Il a bien voulu me faire l'honneur de présider le Jury. Je lui exprime ici ma très déférente gratitude.

Je suis très sensible à l'honneur que m'ont fait Messieurs CRAYA et ROBERT en s'intéressant à mon travail et en acceptant de faire partie du Jury.

Monsieur CHAPRON a eu l'idée de cette étude. Dès le début nous avons eu un contact fraternel permanent qui m'a beaucoup enrichi. Ses idées, suggestions et critiques presque quotidiennes ont été pour moi un véritable moteur. Qu'il reçoive ici mon amicale reconnaissance.

C'est grâce à Monsieur VERNIER que j'ai découvert le calcul numérique en mécanique des fluides. Les nombreuses conversations que nous avons eues depuis m'ont été très utiles surtout au moment de la rédaction qu'il a épluchée scrupuleusement. Je le remercie ici pour le temps et les conseils qu'il m'a donnés.

Un grand merci à Monsieur DELHAYE qui s'est penché avec attention sur la partie physique et qui a éclairé ma lanterne sur les notions de bilan d'interface.

J'ai eu des contacts nombreux et très enrichissants avec Messieurs LATROBE et GRAND. Ils m'ont fourni la base de départ du programme elliptique, et ils m'ont beaucoup appris sur les méthodes numériques en mécanique des fluides. Je leur exprime ici ma sincère reconnaissance.

...

Je remercie également Monsieur TERRIER et toute l'équipe de la CISI pour les services qu'ils m'ont rendus, tant sur le plan du passage des programmes que sur le plan assistance.

Je remercie enfin Mademoiselle PELISSIER qui a bien voulu se charger de ce désagréable travail de frappe.

TABLE DES MATIERES

	Pages
INTRODUCTION: PRESENTATION DES PROBLEMES DE DEPOT CHIMIQUE EN PHASE VAPEUR	1
CHAPITRE I- EQUATIONS REGISSANT L'ECOULEMENT LAMINAIRE D'UN MELANGE DE GAZ INCOMPRESSIBLES	9
I-1 EQUATIONS DE BILAN	10
I-1.1. Equation générale	10
I-1.2. Equation de conservation d'une espèce chimique	12
I-1.3. Equation de continuité	12
I-1.4. Equation du mouvement	13
I-1.5. Equation de l'énergie.	14
I-2 COEFFICIENTS DE TRANSPORT	16
I-2.1. Gaz purs	16
I-2.2. Coefficients de diffusion binaires	18
I-2.3. Mélanges multicomposants	18
I-3 PARAMETRES ADIMENSIONNELS	20
I-4 REACTIONS CHIMIQUES EN PHASE VAPEUR	23
I-4.1. Cinétique chimique	23
I-4.2. Thermodynamique chimique	25
I-4.3. Classes de problèmes d'aérothermochimie	25
I-5 MISE EN EQUATIONS DE NOTRE PROBLEME	28
I-5.1. Hypothèses simplificatrices	28
I-5.2. Equations	30
I-5.3. Conditions aux limites	33
BIBLIOGRAPHIE	40

Pages

CHAPITRE II- RESOLUTION NUMERIQUE 41

II-1. INTRODUCTION 42

II-2. SOLUTIONS ASYMPTOTIQUES 45

II-2.1. Gaz pur isotherme 45

II-2.2. Composition chimique uniforme 46

II-3 METHODES AUX DIFFERENCES FINIES 48

II-3.1. Maillage 48

II-3.2. Convergence 48

II-3.3. Choix des normes 49

II-3.4. Consistance et ordre de l'approximation 50

II-3.5. Stabilité de l'approximation 50

II-3.6. Relation entre consistance, stabilité, convergence 51

II-3.7. Formules aux différences finies 51

II-3.8. Méthode de discrétisation complète et méthode conservative 54

II-3.9. Matrices des problèmes aux dérivées partielles discrétisés. 55

II-4. RESOLUTION DU PROBLEME PARABOLIQUE 60

II-4.1. Généralités sur la méthode 61

II-4.2. Calcul du gradient de pression 61

II-4.3. Calcul de la vitesse radiale 62

II-4.4. Calcul des fonctions principales 64

II-4.5. Cas particulier des écoulements avec transfert de masse 75

II-5. RESOLUTION DU PROBLEME ELLIPTIQUE 75

II-5.1. Approximation du problème 77

II-5.2. Solubilité et stabilité du problème discret 84

II-5.3. Résolution du problème discret 90

BIBLIOGRAPHIE 96

Pages

CHAPITRE III- RESULTATS 97

III-1 CONSIDERATIONS NUMERIQUES 98

III-1.1. Programme parabolique
III-1.2. Programme elliptique 99

III-2 INFLUENCE DES DIFFERENTS PARAMETRES 101

III-2.1. Choix de la grille des cas étudiés 101
III-2.2. Influence de la température 103
III-2.2. Influence de la pression 103
III-2.4. Influence de la dilution 104
III-2.5. Influence du débit 105

III-3 CONCLUSION 106

III-3.1. Etude physique 106
III-3.2. Etude mathématique 108

ANNEXE JUSTIFICATION THEORIQUE DU MODELE D'APPROXIMATION DE LA VISCOSITE DE L'ARGON EN FONCTION DE LA TEMPERATURE. 109

INTRODUCTION

Ce travail a été effectué au Laboratoire d'Etude des Matériaux Minces dans le cadre des recherches sur le dépôt chimique en phase vapeur. Il importe donc de décrire, dans cette introduction, le principe de cette méthode de dépôt.

Le dépôt chimique en phase vapeur constitue avec le dépôt électrolytique et l'évaporation sous vide un procédé de choix pour réaliser des revêtements sur des matériaux divers (aciers, verre, carbone, etc...) et leur conférer de ce fait des propriétés chimiques, mécaniques, électriques ou encore optiques particulières.

La méthode consiste à décomposer ou à réduire, au contact ou au voisinage immédiat d'un substrat porté à une température convenable, un composé volatil du métal à déposer. On utilise souvent la réduction par l'hydrogène d'un halogénure (chlorure ou fluorure) métallique selon une réaction du type

$$Me\ Cl_n + n/2\ H_2 \rightarrow Me + n\ HCl$$

On peut ainsi déposer des métaux tels que le tungstène, le molybdène, le tantale, le niobium, des semiconducteurs comme le silicium, des composés métalliques tels que des oxydes, des carbures, des siliciures, des nitrures et des alliages.

La cinétique de croissance des couches déposées est essentiellement fonction des vitesses de transfert des réactants

.../

gazeux vers les substrats. Il est donc nécessaire de bien connaître les conditions d'écoulement des composés gazeux qui interviennent dans la réaction et en particulier les conditions de diffusion vers le substrat.

CARLTON et OXLEY [1] ont fait une première étude du problème en ne tenant compte que de la diffusion unidimen-sionnelle qui est régie par les équations de STEFAN-MAXWELL.

SUGAWARA [2] a fait une étude plus complète en résolvant simultanément les équations de transfert de masse, énergie et quantité de mouvement. Il a pris les hypothèses de Boussinesq, négligeant les variations des propriétés physiques du mélange gazeux en fonction de la composition et de la température, exception faite des coefficients de diffusion.

Etant donné que d'une part les réactions de dépôt chimique en phase vapeur ont lieu dans la grande majorité des cas sous un très fort gradient thermique, et que d'autre part, les différences entre les propriétés physiques des gaz qui interviennent dans ces réactions sont considérables, il nous a paru indispensable de prendre en compte les variations de la masse volumique globale ρ, de la viscosité μ, de la conductivité thermique λ et des coefficients de diffusion D_i en fonction de la composition du mélange gazeux et de la température.

Vouloir tenter d'écrire le programme général qui traiterait tous les problèmes de dépôt chimique en phase vapeur nous paraît une ambition démesurée en raison de la diversité des situations (écoulement laminaire ou turbulent, compressible ou incompressible, figé ou relaxé ou à l'équi-libre). Nous avons donc restreint le problème au cas des écoulements laminaires incompressibles figés avec des réactions chimiques catalysées par une paroi. C'est une situation très fréquente dans le dépôt chimique en phase

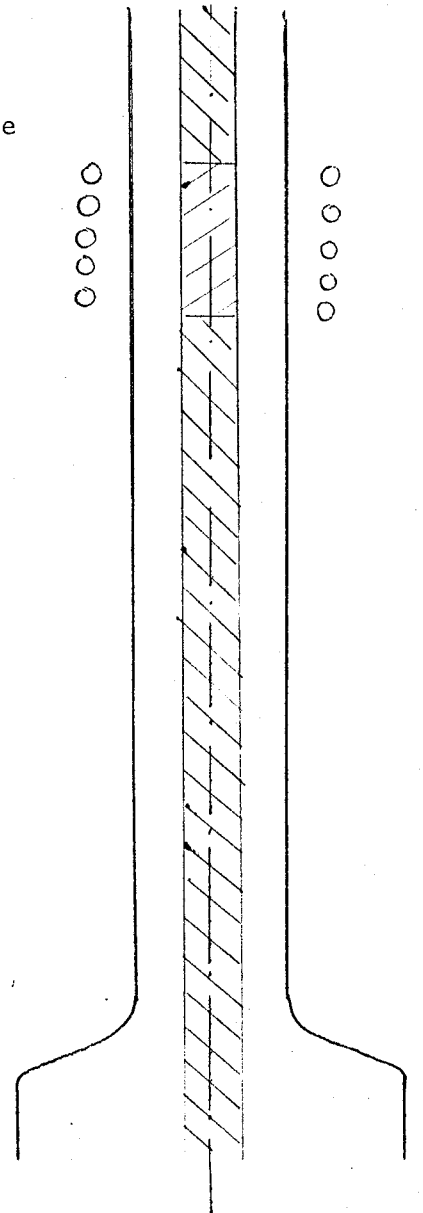
vapeur. En utilisant un programme d'équilibres chimiques que nous avons réalisé [3], nous pourrions également traiter sans difficulté le cas de l'écoulement à l'équilibre.

Le problème concret que nous nous proposons de résoudre est le suivant : on cherche à recouvrir de molybdène la paroi latérale d'un substrat cylindrique en carbone. Le dépôt s'effectue selon la réaction hétérogène:

$$MoF_6 + 3H_2 \rightarrow Mo + 6\ HF$$

Cette réaction est régie par la cinétique. Elle est totale sur la paroi du substrat et dans son voisinage immédiat, pratiquement impossible ailleurs.

Le substrat est placé dans un tube de quartz vertical concentrique. Il est supporté par un cylindre d'alumine de même diamètre. La géométrie du réacteur est représentée à l'échelle 1/2 sur la figure 1.



Le substrat est chauffé par induction électromagnétique. Le tube est refroidi par un courant d'eau, afin d'éviter le dépôt sur sa paroi.

On introduit dans le bas du tube un mélange d'hydrogène et d'hexafluorure de molybdène, éventuellement dilués dans de l'argon si l'on veut réduire les pressions partielles.

Une pompe permet de faire varier les vitesses d'écoulement dans le domaine laminaire.

Il s'agit d'apporter des réponses aux deux questions suivantes :

1/ Que se passe-t-il lorsque l'on fixe des conditions données pour la vitesse, la température et les concentrations ?

2/ Comment fixer ces conditions pour obtenir un dépôt de bonne qualité, épais et régulier ?

C'est bien entendu le second problème qui est le plus important, mais il est également le plus compliqué. Nous n'avons pas la prétention de résoudre un problème aussi difficile, tant pour la formulation que pour la résolution. Nous essaierons d'apporter une réponse en résolvant le premier problème dans un nombre suffisant de cas "bien choisis".

Au chapitre I, nous mettons en place les données théoriques qui nous sont nécessaires, et tout d'abord les équations de bilan (I-1), puis les lois de variation des coefficients de transport (I-2), les paramètres adimensionnels (1-3), et nous examinons l'influence des réactions chimiques sur les écoulements (1-4). En faisant certaines hypothèses simplificatrices (1-5-1), nous pouvons alors formuler les équations du problème (1-5-2) et les conditions aux limites (1-5-3).

Au chapitre II, nous décrivons les méthodes de résolution du problème posé. Après avoir exposé le problème bien particulier des solutions asymptotiques (II-2), qui ne présente pas de difficulté numérique, nous mettons en place les éléments théoriques généraux sur les différences finies qui nous sont nécessaires (II-3). La résolution effective du problème peut se faire par deux types de méthodes complémentaires : d'une part la méthode reposant

sur la formulation parabolique qui résulte de l'hypothèse de la couche limite (II-4) ; d'autre part la méthode la plus générale, qui est aussi la plus lourde (II-5).

Au chapitre III nous présentons les résultats, et tout d'abord ceux correspondant à des écoulements de gaz purs (III-1), afin de mettre en évidence l'aspect aérothermique du problème. Nous tenons compte ensuite du transfert de masse (III-2).

BIBLIOGRAPHIE DE L'INTRODUCTION

[1] H.E.CARLTON et J.H.OXLEY
"Mass Transfer during Chemical Vapor Deposition at a cylindrical Surface" Proceedings of the Conference on CVD. American Nuclear Society (1967).

[2] K.SUGAWARA
"Silicon Epitaxial Growth by rotating Disk Method"- Journal of the Electrochemical Society, vol.119, n°12, p. 1749 (1972).

[3] J.E.MAZILLE
"Calcul automatique de la composition d'un équilibre chimique complexe". Compte rendu DMG/SPCC- Centre d'Etudes Nucléaires de Grenoble (1971).

PRINCIPALES NOTATIONS. DIMENSIONS ET UNITES ADOPTEES

Notation	Signification	Dimension	Unité
Cp	Capacité calorifique à pression constante	$L^2\Theta^{-2}T^{-1}$	$cal.g^{-1}K^{-1}$
D	Coefficient de diffusion	$L^2\Theta^{-1}$	cm^2s^{-1}
D_T	Coefficient de diffusion thermique	$ML^{-1}\Theta^{-1}$	$g.cm^{-1}s^{-1}$
Fr	Nombre de Froude	1	-
g	Accélération de la pesanteur	$L\Theta^{-2}$	$cm.s^{-2}$
Gr	Nombre de Grashof	1	-
k	Constante de Boltzmann	$ML^2\Theta^{-2}T^{-1}$	cal.molécule^{-1} K^{-1}
lo	Longueur de référence	L	cm
M	Masse molaire	M	$g.mole^{-1}$
P	Pression hydrodynamique	$ML^{-1}\Theta^{-2}$	baryes ou atmosphères
Pr	Nombre de Prandtl	1	-
r	Longueur radiale	L	cm
R	Constante des gaz parfaits	$ML^2\Theta^{-2}T^{-1}$	$cal.mole^{-1}$ K^{-1}
Re	Nombre de Reynolds	1	
Sc	Nombre de Schmidt	1	
T	Température	T	K
t	Temps	Θ	s
u	Vitesse radiale	$L\Theta^{-1}$	$cm.s^{-1}$
$\bar{V}$	Vecteur vitesse	$L\Theta^{-1}$	$cm.s^{-1}$
v	Vitesse axiale	$L\Theta^{-1}$	$cm.s^{-1}$
W	Production massique par unité de temps	$ML^{-3}\Theta^{-1}$	$g.cm^{-3}s^{-1}$
X	Fraction molaire	1	

Y	Fraction massique	1	
z	Longueur axiale	L	cm
α	Exposant relatif aux variations de viscosité	1	
β	Coefficient de dilatation	T^{-1}	K^{-1}
ε	Niveau d'énergie	$ML^2\Theta^{-2}$	$cal.mole^{-1}$
λ	Conductivité thermique	$ML\Theta^{-1}T^{-1}$	$cal.cm^{-1}s^{-1}K^{-1}$
μ	Viscosité dynamique	$ML^{-1}\Theta^{-1}$	$g.cm^{-1}s^{-1}$
ν	Viscosité cinématique	$L^2\Theta^{-1}$	cm^2s^{-1}
ρ	Masse volumique	ML^{-3}	$g.cm^{-3}$

INDICES POUR UNE QUANTITE q

q sans indice : valeur moyenne pour le mélange

q_o : valeur de référence (en général la valeur moyenne à l'entrée du réacteur)

q^* : valeur adimensionnelle q/q_o

q_1 : valeur à la paroi interne du réacteur

q_2 : valeur à la paroi externe du réacteur

q_e : valeur à l'entrée du réacteur

q_s : valeur à la sortie du réacteur

q_σ : valeur au substrat

q_S : valeur pour le solide

q_i : valeur pour le $i^{ème}$ gaz

q_{ij} : valeur pour le mélange des gaz i et j

NOTATIONS TENSORIELLES

$\bar{\bar{T}} = (Tij)$: tenseur d'ordre 2 ou matrice

$\bar{T} = (Ti)$: tenseur d'ordre 1 ou vecteur

T : tenseur d'ordre 0 ou scalaire

ST : produit tensoriel d'ordre (ordre de S + ordre de T)

Exemples : $\bar{S}\bar{T} = (SiTj)$, $S\bar{T} + (ST)$

$S.T$: produit contracté d'ordre ordre de S - ordre deT

Exemples : $\bar{S}.\bar{T} = \sum_i SiT$ (produit scalaire), $\bar{S}.\bar{\bar{T}} = (\sum_j SjTji)$

$\bar{\bar{T}}.\bar{S} = (\sum_j TijSj)$

$\bar{\nabla}$: tenseur de dérivation

$\bar{\nabla}S = \overline{grad}(S)$, $\bar{\nabla}.\bar{V} = div(\bar{V})$, $\bar{\nabla}\,\bar{V} = (\frac{\partial Vi}{\partial x_j})$ (en coordonnées cartésiennes)

Δ : Laplacien (tenseur d'ordre 0)

Pour plus de précisions, on pourra consulter "Transport phenomena" de BIRD, STEWART ET LIGHTFOOT ou la référence [1] du chapitre I.

CHAPITRE 1

EQUATIONS REGISSANT L'ECOULEMENT LAMINAIRE D'UN MELANGE DE GAZ A FAIBLE NOMBRE DE MACH

On considère un mélange de gaz G_1, G_2,... G_n, dont la masse pour une unité de volume du mélange est respectivement ρ_1, ρ_2, ... ρ_n.

La masse volumique du mélange est donc $\rho = \sum_{i=1}^{n} \rho_i$ (1)

Soient $\bar{V}_1$, $\bar{V}_2$, ... $\bar{V}_n$ les vitesses des gaz. La quantité de mouvement par unité de volume est $\bar{Q} = \sum_{i=1}^{n} \rho_i \bar{V}_i$ (2). Ceci nous amène à définir la vitesse barycentrique $\bar{V} = \frac{1}{\rho} \sum_{i=1}^{n} \rho_i \bar{V}_i$ (3) qui est telle que $\bar{Q} = \rho \bar{V}$. Ceci nous permet de donner une formulation unique des équations du mouvement pour un gaz seul ou pour un mélange.

Soit V_o une vitesse caractéristique de l'écoulement (par exemple la valeur moyenne de V ou sa valeur en un point donné), et soit a la vitesse du son dans le mélange gazeux. On appelle nombre de Mach le rapport $\mathcal{M} = \frac{V_o}{a}$. On dira que l'écoulement est incompressible si $\mathcal{M}$ est très inférieur à 1. Cela se traduira par des simplifications importantes dans les équations. En particulier, la masse volumique ne dépendra plus que de la température. Nous ne nous attardons pas sur la définition de l'écoulement laminaire. Disons que c'est un écoulement sage, qui se prête "aisément" au calcul numérique. Il est caractérisé par de faibles valeurs du nombre de Reynolds que nous verrons au I.2.

Si on admet la loi des gaz parfaits $p/\rho = RT/M$ qui est valable en milieu dilué, pour deux températures T et T' on aura $\frac{\rho_i}{\rho_i'} = \frac{T'}{T}$ pour i = 1, ... n (4) (loi de DALTON).

I - 1. EQUATIONS DE BILAN [1]

I - 1.1. Equation générale de bilan

On considère un volume de contrôle $\mathcal{V}$ limité par une surface fixe A. Soit F une propriété (scalaire ou vectorielle)

extensive du fluide, c'est-à-dire localement proportionnelle à $\mathcal{V}$ et soit $f = \frac{F}{\rho}$ la densité de F. L'équation de bilan s'énonce ainsi : "l'augmentation algébrique de F par unité de temps dans le volume $\mathcal{V}$ est égale à la somme de la quantité de F entrant par la surface A et de la quantité de F produite dans $\mathcal{V}$".

Ce qui s'écrit : $$\frac{\partial}{\partial t}\iiint_{\mathcal{V}} F \, d\tau = -\iint_A J_F . \bar{n} \, dA + \iiint_{\mathcal{V}} W_F \, d\tau \qquad (5)$$

J_F étant le flux de F sortant par A. C'est un tenseur d'ordre 1 si F est scalaire, d'ordre 2 si F est vectorielle.
$\bar{n}$ est la normale extérieure à la surface A.
W_F est la production de F par unité de volume.

S'il n'y a pas de surface de discontinuité dans V, le théorème de la divergence permet de transformer l'équation en :

$$\frac{\partial}{\partial t}\iiint_{\mathcal{V}} F \, d\tau = -\iiint_{\mathcal{V}} \bar{\nabla} . J_F \, d\tau + \iiint_{\mathcal{V}} W_F \, d\tau \qquad (6)$$

Ce qui nous donne localement l'équation aux dérivées partielles

$$\frac{\partial F}{\partial t} = -\bar{\nabla} . J_F + W_F \qquad (7)$$

Soit $\bar{V}$ la vitesse barycentrique, définie par (3) des particules contenues dans $\mathcal{V}$. Le flux J_F se compose de deux termes $J_F = j_F + F\bar{V}$.

$F\bar{V}$ est appelé le flux convectif. Il ne dépend que du mouvement. Si l'on considérait une surface qui suit le mouvement barycentrique (point de vue lagrangien), il serait nul.

j_F est appelé flux de diffusion. Il ne dépend que des gradients de F. C'est le flux de F à travers une surface qui suit le mouvement barycentrique.

En introduisant j_F dans l'équation (7) on obtient :

$$\frac{\partial F}{\partial t} + \bar{\nabla}.(F\bar{V}) = - \bar{\nabla}.j_F + W_F \qquad (8)$$

Ou encore, en utilisant la dérivée lagrangienne $\frac{d}{dt}=\frac{\partial}{\partial t}( )+\bar{V}.\bar{\nabla}( )$ et l'équation de continuité (13)

$$\rho \frac{df}{dt} = - \bar{\nabla}.j_F + W_F \qquad (9)$$

Toutes les équations de transport peuvent s'écrire à partir de (8) ou (9)en explicitant F, j_F et W_F à partir des lois physiques.

I - 1.2. Equation de conservation du ième gaz G_i.

On prend $F = \rho_i$.

Donc $f = \frac{\rho i}{\rho} = Y_i$, ième titre massique. Le flux de ρ_i est le vecteur $\bar{J}_i = \rho_i \bar{V}_i$, $\bar{V}_i$ étant la vitesse absolue du ième gaz. En écrivant l'équation (7) pour $F = \rho_i$, on obtient donc

$$\frac{\partial \rho i}{\partial t} = - \bar{\nabla}.(\rho_i \bar{V}_i) + W_i \qquad (10)$$

Si l'on introduit le flux de diffusion $\bar{j}_i = \bar{J}_i - \rho_i \bar{V}$ $= \rho_i (\bar{V}_i - \bar{V})$, on est conduit à définir la vitesse de diffusion $\bar{v}_i = \bar{V}_i - \bar{V}$ telle que $\bar{j}_i = \rho_i \bar{v}_i$. $\bar{v}_i$ peut s'exprimer en fonction des gradients de fractions massiques et de température par une relation du type $\bar{v}_i = - \frac{1}{Y_i}(D_i \bar{\nabla} Y_i + \frac{D_{Ti}}{\rho} \frac{\bar{\nabla} T}{T})$ (11)
D_i et D_{Ti} sont les coefficients de diffusion chimique et thermique. Nous verrons au I-2 comment les calculer. Notre équation (8) se détaille donc en

$$\frac{\partial (\rho Y_i)}{\partial t} + \bar{\nabla} . (\rho Y_i \bar{V}) = \bar{\nabla}. \left[\rho D_i \bar{\nabla} Y_i + D_{Ti} \frac{\bar{\nabla} T}{T}\right] + W_i$$

ou encore, en utilisant l'équation de continuité $\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla (\rho V) = 0$ que nous allons voir

$$\rho \frac{dYi}{dt} = \bar{\nabla} . \left[\rho D_i \bar{\nabla} Y_i + D_{Ti} \frac{\bar{\nabla} T}{T}\right] + W_i \qquad (12)$$

I - 1.3. Equation de continuité

Si nous sommons l'équation (10) pour i allant de 1 à n, nous obtenons $\frac{\partial}{\partial t} (\sum_{i=1}^{n} \rho i) = - \bar{\nabla}.(\sum_{i=1}^{n} \rho_i \bar{V}_i) + \sum_{i=1}^{n} W_i$.

$\sum_i \rho_i = \rho$, $\sum_i \rho_i \overline{V}_i = \rho\overline{V}$ et en phase gazeuse homogène $\sum_i W_i = 0$. S'il y a production d'un solide, en particulier aux parois, la production totale de molécules gazeuses peut être négative.

Mais dans le gaz on aura $\frac{\partial \rho}{\partial t} + \overline{\nabla}.(\rho\overline{V}) = 0$ (13) qui est l'équation de bilan de ρ.
On pouvait aussi obtenir cette équation directement en écrivant que le flux de diffusion de la masse est nul.

I - 1.4. Equation du mouvement. F est maintenant le vecteur quantité de mouvement $\rho\overline{V}$. La productinn de quantité de mouvement est créée par les forces extérieures et s'écrit $\overline{W}_F = \sum_{i=1}^{n} \rho_i \overline{f}_i$, le $\overline{f}_i$ étant la force extérieure relative à chaque espèce. Dans le cas où seule la force de gravité agit, $\overline{W}_F = \overline{g} \sum_i \rho_i = \rho \overline{g}$.

$\overline{F}$ étant un vecteur, son flux de diffusion est un tenseur d'ordre 2 $\overline{\overline{j}}_F$ (tenseur des contraintes). Pour les fluides visqueux newtroniers (en particulier pour nos gaz),

$\overline{\overline{j}}_F = -P\,\overline{\overline{I}} + \overline{\overline{T}}$, où P est la pression, $\overline{\overline{I}}$ le tenseur unité et $\overline{\overline{T}}$ le déviateur des contraintes visqueuses. Nous allons expliciter $\overline{\overline{T}}$ en coordonnées polaires r, θ, z, avec $u = V_r$, $v = V\theta$, $w = Vz$

$$
\begin{aligned}
Trr &= \mu\left[2\frac{\partial u}{\partial r} - \frac{2}{3}\overline{\nabla}\cdot\overline{\nabla}\right] \\
T\theta\theta &= \mu\left[\frac{2}{r}\left(\frac{\partial v}{\partial \theta} - u\right) - \frac{2}{3}\overline{\nabla}.\overline{\nabla}\right] \\
Tzz &= \mu\left[2\frac{\partial w}{\partial z} - \frac{2}{3}\overline{\nabla}.\overline{\nabla}\right] \qquad (14) \\
Trz &= Tzr = \mu\left[\frac{\partial w}{\partial r} + \frac{\partial u}{\partial z}\right] \\
Tr\theta &= T\theta r = \mu\left[\frac{1}{r}\frac{\partial u}{\partial \theta} + r\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{v}{r}\right)\right] \\
T_{\theta z} &= Tz\theta = \mu\left[\frac{1}{r}\frac{\partial w}{\partial \theta} + r\frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{v}{r}\right)\right]
\end{aligned}
$$

On peut donc écrire les équations générales du mouvement

$\rho \frac{d\vec{V}}{dt} = \vec{\nabla}.(-P\overline{\overline{I}} + \overline{\overline{T}}) + \rho\vec{g}$ (15) à partir des expressions de $\vec{\nabla}.\overline{\overline{T}}$:

$$(\vec{\nabla}.\overline{\overline{T}})_r = \frac{\partial Trr}{\partial r} + \frac{1}{r}\frac{\partial Tr\theta}{\partial \theta} + \frac{Trr - T\theta\theta}{r} + \frac{\partial Trz}{\partial z}$$

$$(\vec{\nabla}.\overline{\overline{T}})_\theta = \frac{\partial Tr\theta}{\partial r} + \frac{1}{r}\frac{\partial T\theta\theta}{\partial \theta} + 2\frac{Tr\theta}{r} + \frac{\partial Tz\theta}{\partial z}$$

$$(\vec{\nabla}.\overline{\overline{T}})_z = \frac{\partial Trz}{\partial r} + \frac{1}{r}\frac{\partial Tz\theta}{\partial \theta} + \frac{Trz}{r} + \frac{\partial Tzz}{\partial z}$$

On voit la complexité des équations (15) que nous n'écrirons pas en détail. Nous gardons la forme générale

$$\rho \frac{d\vec{V}}{dt} = -\vec{\nabla}P + \vec{\nabla}.\overline{\overline{T}}\ (\mu, V) + \rho\vec{g} \qquad (15)$$

Nous notons $\overline{\overline{T}} = \overline{\overline{T}}\ (\mu, V)$ pour montrer que $\overline{\overline{T}}$ dépend non seulement des vitesses, mais aussi des températures et de la composition par l'intermédiaire du coefficient μ.

On cherche en général à simplifier (15) en faisant des hypothèses, dont la plus courante (μ constant, ρ constant) conduit aux équations de Navier-Stokes :

$$\rho \frac{d\vec{V}}{dt} = -\vec{\nabla}P + \mu\,\vec{\nabla}\vec{V} + \rho\vec{g} \qquad (16)$$

I - 1.5. Equation de l'énergie [2] .

F est l'énergie totale U du fluide, somme de l'énergie cinétique $\rho\frac{V^2}{2}$ et de l'énergie interne E.

Nous établirons l'équation de l'énergie à partir du premier principe de la thermodynamique, qui s'énonce : "l'augmentation ΔU de l'énergie du fluide pendant le temps dt dans un volume $\mathcal{V}$ est la somme du travail $\Delta\mathcal{C}$ et de la chaleur ΔQ fournis". Soit $\Delta U = \Delta\mathcal{C} + \Delta Q$

Pour un gaz parfait,

.../

$$\Delta U = \iiint_{\mathcal{V}} \frac{d}{dt}\left(\rho \frac{V^2}{2}\right) d\tau + \iiint_{\mathcal{V}} \rho \frac{d}{dt}\left(C_p T - \frac{P}{\rho}\right) d\tau \qquad (17)$$

Les lois de la mécanique nous donnent :

$$\Delta \mathcal{C} = \iiint_{\mathcal{V}} \frac{d}{dt}\left(\rho \frac{V^2}{2}\right) d\tau - \iiint_{\mathcal{V}} P \frac{d\left(\frac{1}{\rho}\right)}{dt} \rho \, d\tau + \iiint_{\mathcal{V}} \phi \, d\tau \qquad (18)$$

ϕ étant la fonction de dissipation visqueuse, reliée aux équations (14) et (15).

La quantité de chaleur fournie à $\mathcal{V}$ se décompose en :

- flux de diffusion de la chaleur, apporté par conduction, qui est d'après la loi de Fourier :

$$\iint_A \lambda \frac{dT}{d\vec{n}} \, d\sigma \text{ , soit } \iiint_{\mathcal{V}} \vec{\nabla} \cdot (\lambda \vec{\nabla} T) \, d\tau$$

- flux produit dans le volume par rayonnement, réactions chimiques ou effet thermique de la diffusion. Nous le noterons Θ

L'équation de l'énergie peut donc s'écrire :

$$\underbrace{\iiint_{\mathcal{V}} \vec{\nabla} \cdot (\lambda \vec{\nabla} T) \, d\tau}_{\text{conduction thermique}} + \underbrace{\iiint_{\mathcal{V}} \Theta \, d\tau}_{\text{autres sources de chaleur}} + \underbrace{\iiint_{\mathcal{V}} \phi \, d\tau}_{\text{dissipation visqueuse}} = \underbrace{\iiint_{\mathcal{V}} \rho \frac{d}{dt}(C_p T) d\tau}_{\text{convection thermique}} - \underbrace{\iiint_{\mathcal{V}} \frac{dp}{dt} d\tau}_{\text{effets de compressibilité}} \qquad (19)$$

L'hypothèse des écoulements incompressibles nous permet de négliger le troisième et le cinquième terme. Nous résoudrons donc une équation qui s'écrit localement :

$$\overline{\nabla}.(\lambda\overline{\nabla}T) + \Theta = \rho \frac{d}{dt}(CpT) \qquad (20)$$

C'est tout simplement l'équation de transport de l'enthalpie H = CpT pour un gaz parfait.

I - 2. COEFFICIENTS DE TRANSPORT

On trouve dans le livre de Hirschfelder-Curtiss-Bird [3] une étude très complète des coefficients de transport. Ce livre donne des formules de calcul reposant sur la théorie cinétique des gaz. Ces formules sont, la plupart du temps, trop complexes pour un calcul numérique où on les utilise des dizaines de milliers de fois. C'est pourquoi nous avons recherché des formules approchées qui ont été testées avec succès dans un grand nombre de cas. Nous en avons emprunté une bonne partie à Reid-Sherwood [4] . Nous avons fabriqué les autres avec des formules d'approximations simples, en utilisant soit des résultats tabulés, soit des résultats calculés à partir des formules rigoureuses [3] .

I - 2.1. Gaz purs

Ce cas est important car on y assimilera le cas de composants très dilués dans un gaz inerte.

I - 2.1.1. Viscosité dynamique

La viscosité, pratiquement indépendante de la pression, croît avec la température suivant la loi

$$\mu = 2.67 \times 10^{-5} \frac{\sqrt{MT}}{\sigma^2 \, \Omega^{22}(T^*)} \qquad (21)$$

où μ est en $g.cm^{-1}s^{-1}$, M est la masse molaire (adimensionnelle), T la température en K, σ le diamètre de collision en Å, $T^* = Tk/\varepsilon$ la température réduite, $\frac{\varepsilon}{k}$ un paramètre energétique en

.../

et Ω^{22} une intégrale de collision tabulée.

σ et $\frac{\varepsilon}{k}$ se calculent à partir de résultats expérimentaux.

On peut utiliser par exemple les formules $\sigma = 5/6\ V_c^{1/3}$ (où V_c est le volume critique en cm^3/mole) $\frac{\varepsilon}{k} = 0.75\ T_c$ (où T_c est la température critique en K). Nous avons utilisé cette formule pour calculer les viscosités non tabulées.

Nous proposons un modèle empirique plus simple, mais qui marche très bien pour les gaz monoatomiques loin de la température critique.

$$\mu = \mu_o(\frac{T}{T_o})^{\alpha} \qquad (22)$$

où α est un paramètre compris entre I/2 et 1, à ajuster suivant la nature du gaz, par une méthode de moindres carrés. Nous verrons en annexe I que ce modèle se justifie mathématiquement, puisqu'il existe toujours un et un seul α optimal.

On peut voir la validité du modèle sur la figure 5. Pour les gaz polyatomiques, nous avons utilisé des lois paraboliques $\mu = aT^2 + b\ T + C$ (23) qui donnent des résultats très corrects (figure1) dans notre gamme de températures.

I - 2.I.2. Conductivité thermique

La conductivité est pratiquement proportionnelle à la viscosité : $\lambda = A\ \frac{\mu}{M}$, mais on ne s'est pas encore mis d'accord sur la valeur de A. On pense [4] qu'il doit être compris entre $MCp + 1.25\ R$ (formule d'Eucken) et $1.32MCp + 0.45R$ (formule de Hirschfelder). Cp est la chaleur spécifique à pression constante en $cal.g^{-1}{}^{\circ}K^{-1}$.

Notons que Cp peut varier dans des proportions importantes avec la température.

.../

Nous avons repris les mêmes formules d'approximation que pour la viscosité, avec une petite variante pour l'hydrogène pour lequel λ suit une loi affine $\lambda = bT + c$ (figure 5). Nous avons emprunté les données à [5].

I - 2.2. Coefficients de diffusion binaire

Nous utiliserons la formule rigoureuse de Hirschfelder-Curtiss-Bird :

$$D_{12} = 1.858 \times 10^{-3} \frac{\sqrt{T^3/M_{12}}}{P\sigma_{12}^2 \Omega^{11}(T^*_{12})} \quad cm^2.s^{-1} \qquad (25)$$

où T est la température en K

$M_{12} = \frac{M_1 M_2}{M_1+M_2}$ est la masse réduite des gaz de masses molaires M_1 et M_2.

P est la pression en atmosphères

T^*_{12} est la température réduite Tk/ε_{12}

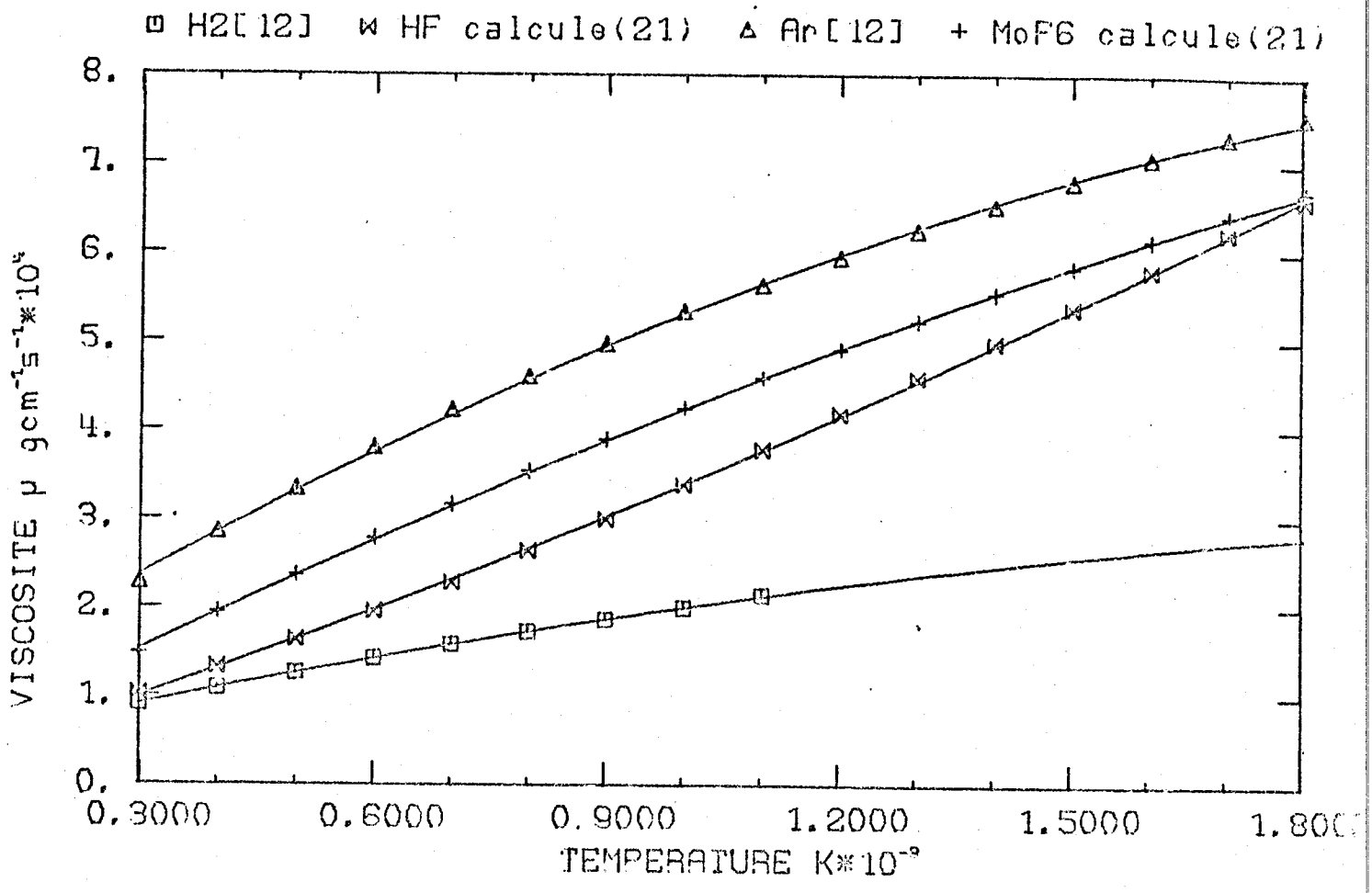
σ_{12} et $\frac{\varepsilon 12}{k}$ se calculent à partir de σ_1, σ_2, ε_1, ε_2. Si aucun gaz n'est polaire, $\sigma_{12} = \frac{\sigma 1 + \sigma 2}{2}$, $\varepsilon_{12} = \sqrt{\varepsilon_1 \varepsilon_2}$

Ω^{11} est une intégrale de collision tabulée que nous avons approximée par une fonction $\Omega^{11}(T^*) = a(\text{Log } T^*)^2 + b \text{ Log } T^* + C$ à moins de 1 % près.

I - 2.3. Mélanges multicomposants

Les formules rigoureuses [3] sont très compliquées et inutilisables pour le calcul numérique. Parmi les nombreuses formules semi-empiriques nous retiendrons les suivantes, qui sont valables à quelques % près pour les gaz polaires ou non polaires.

.../



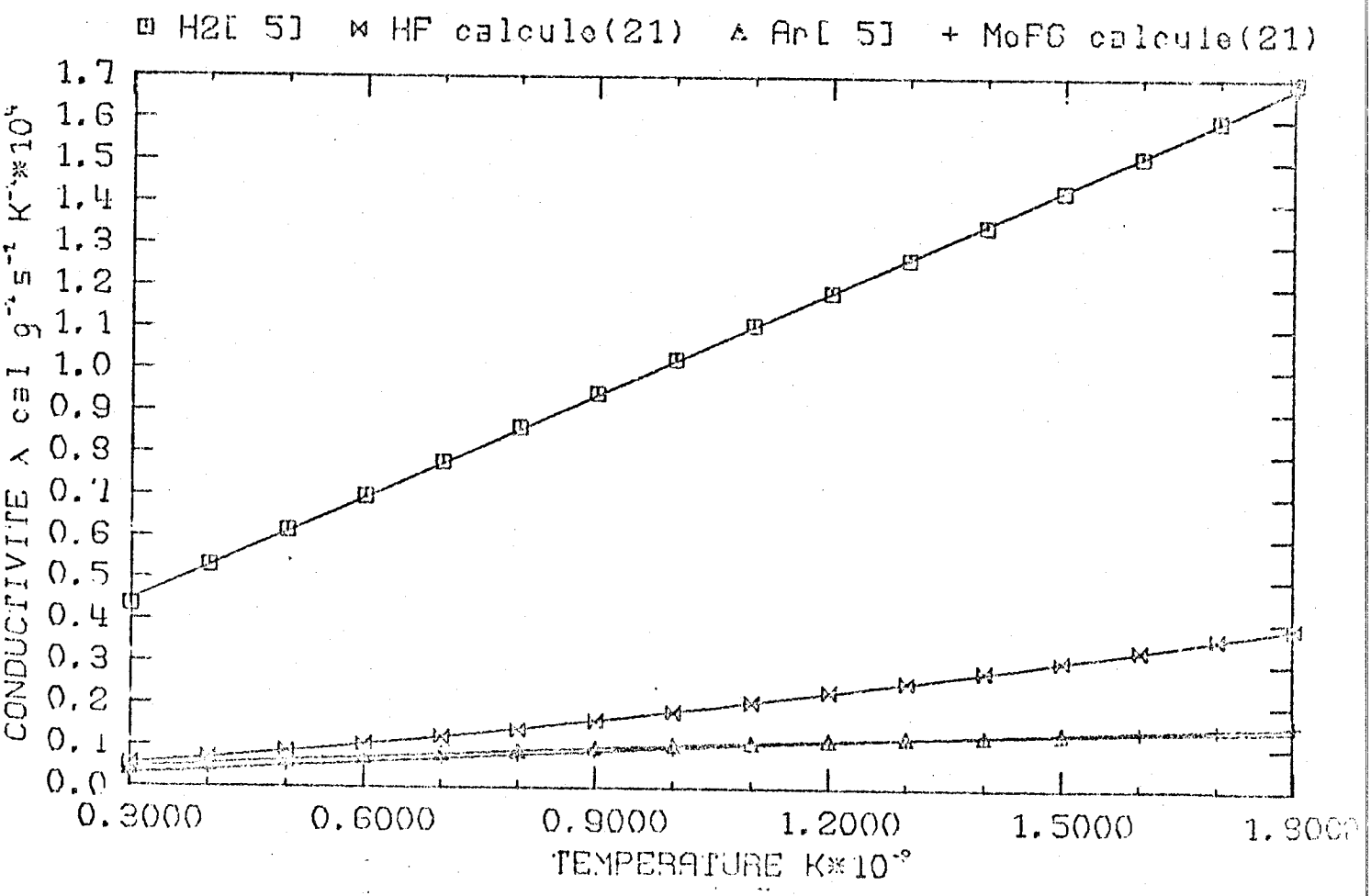


FIGURE 5 APPROXIMATION DES VISCOSITES ET CONDUCTIVITES PAR LES FORMULES (22)(AR) ET (23)(H2,HF,MOF6)

I - 2.3.1. Viscosité

Nous choisissons la formule de Bromley et Wilke [4]

$$\mu = \sum_{i=1}^{n} \frac{\mu_i}{1 + \sum_{j \neq i} \phi_{ij} \frac{X_j}{X_i}} \qquad (26)$$

avec $\phi_{ij} = \dfrac{\left[1 + (\frac{\mu_i}{\mu_j})^{I/2} (\frac{M_j}{M_i})^{I/4}\right]^2}{2\sqrt{2}\ (1 + \frac{M_i}{M_j})^{I/2}}$, Xi est la ième fraction molaire

$$X_i = Y_i \frac{M}{M_i}$$

I - 2.3.2. Conductivité

La formule la plus précise est celle de Tondon et Saxena [5]

$$\lambda = \sum_{i=1}^{n} \frac{\lambda_i}{1 + 0.85 \sum_{j \neq i} \phi_{ij} \frac{X_j}{X_i}} \qquad (27)$$

I - 2.3.3. Coefficient de diffusion du composant i à travers tous les autres

Nous utilisons la formule de Wilke [6] qui a été vérifiée pour des mélanges ternaires.

$$D_i = \frac{1 - X_i}{\sum_{j \neq i} X_j / D_{ij}} \qquad (28)$$

I - 2.3.4. Coefficient de diffusion thermique

Sauf dans le cas binaire, on ne connaît pas de formule,

.../

même approchée, qui permette de calculer D_{Ti}. Ce serait un beau sujet de thèse.

I - 3. PARAMETRES ADIMENSIONNELS

Si dans nos équations nous divisons les longueurs par une longueur caractéristique du problème, les vitesses par une vitesse caractéristique, et que nous faisons de même pour toutes les autres variables, nous obtenons des équations adimensionnelles où apparaissent des paramètres qui à eux seuls caractérisent notre problème (du moins pour des conditions aux limites données). Ce procédé est intéressant car il permet de réduire au minimum le nombre de paramètres du problème.

Soient l_o, U_o, T_o, C_{po}, μ_o, λ_o, D_o, ρ_o respectivement une longueur, vitesse, température, capacité calorifique, viscosité, conductivité, diffusion, masse volumique, caractéristiques du problème. En divisant toutes les variables correspondantes par ces quantités, on obtient les équations adimensionnelles suivantes à la place de (12), (13), (16) et (20)

$$\rho^* \frac{dY_i}{dt} = - \frac{1}{ReSc} \overline{\nabla} \cdot \left[\rho^* D_i^* \overline{\nabla} Y_i + D_{Ti}^* \frac{\overline{\nabla} T^*}{T^*} \right] + W_i^* \qquad (29)$$

$$\frac{\partial \rho^*}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \overline{V})^* = 0 \qquad (30)$$

$$\rho^* \frac{d\overline{V}^*}{dt} = - \overline{\nabla} p^* + \frac{1}{Re} \overline{\nabla} \cdot \overline{\overline{T}}(\mu, V) + \frac{\rho^*}{Fr} \overline{e} \qquad (31)$$

$$\rho^* \frac{dT^*}{dt} = \frac{1}{RePr} \overline{\nabla} \cdot (\overline{\lambda \nabla} T)^* + Q^* \qquad (32)$$

.../

Les étoiles indiquent que les quantités sont adimensionnelles, $\bar{e}$ est le vecteur de composantes (0, 0, -1) si on prend la verticale ascendante comme troisième axe de coordonnées.

Il apparaît quatre paramètres adimensionnels qui sont les nombres de :

Reynolds $Re = \rho_o \frac{U_o l_o}{\mu_o}$ (forces d'inertie/forces de viscosité)

Froude $Fr = \frac{U_o^2}{g l_o}$ (force d'inertie/force de pesanteur) ou bien (convection forcée /convection naturelle

Prandtl $Pr = \frac{\mu_o C_o}{\lambda_o}$ (diffusion de la quantité de mouvement/ diffusion de la chaleur)

Schmidt $Sc = \frac{\mu_o}{\rho_o D_o}$ (diffusion de la quantité de mouvement/ diffusion chimique)

Remarque Dans le cas de faibles écarts de température, on prend $\rho = \rho_o$ dans les équations, sauf dans le terme ρg de l'équation (16) que l'on remplace par $\rho_o g + (\rho - \rho_o) g = \rho_o g (1 - \beta (T - T_o))$

(Hypothèses de Boussinesq). Le groupement adimensionnel qui apparaît est alors

$$\frac{1}{\beta \Delta T Fr} = \frac{\rho_o U_o^2}{\mu_o^2} l_o^2 \times \frac{\mu_o^2}{g \beta \Delta T l_o^3 \rho_o^2} = \frac{Re^2}{Gr}$$

Gr est le nombre de Grashof. Nous en donnerons une définition plus générale en posant $Gr = \frac{g \rho_o \Delta\rho l_o^3}{\mu_o^2}$

On retrouve bien la définition précédente dans le cas du fluide de Boussinesq puisqu'alors $\beta \Delta T = \frac{\Delta\rho}{\rho_o}$

Notre problème est donc défini par :

.../

- les quatre paramètres Re, Fr(ou Gr), Pr, Sc,
- les équations (29) à (32)
- les lois de variations de ρ et des coefficients de transport définies en 1.2.
- les paramètres géométriques, dont le nombre est réduit de 1 par l'adimensionnalisation.

Les quatre paramètres précédents seront nos données numériques. D'autres paramètres caractériseront nos résultats numériques. Ce sont des flux sur une paroi rapportés à un flux caractéristique

coefficient de frottement $C_f = \mu \left(\frac{\partial v}{\partial r} \right)_1 / \left(\mu_o U_o / l_o \right)$

nombre de Nusselt $Nu = \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial r} \right)_1 / \left(\lambda_o (T_1 - T_o) / l_o \right)$

nombre de Sherwood $Sh = \frac{k_S l_o}{D_o}$

où k_S est le coefficient de transfert de masse défini par

$$k_S = \left(\frac{\rho}{\rho_S} \frac{M_S}{M_h} D_h \frac{\partial Y_h}{\partial r} \right)_\sigma$$

Les indices S, σ et h représentent respectivement le solide (pour nous Mo), le substrat et l'halogénure (pour nous MoF_6) d'où est extrait le solide.

Notons que k_S a les dimensions d'une vitesse. Le flux massique de dépôt est $\rho_S k_S$. La signification de k_S apparaîtra au I-5.3.4.

I - 4. REACTIONS CHIMIQUES EN PHASE VAPEUR

Nous allons tenter un bref survol de cette question, dont la théorie a encore beaucoup de progrès à faire, du fait de la complexité des phénomènes de cinétique chimique.

I - 4.1. Cinétique chimique [1]

Nous considérons une réaction chimique

$$\sum_{i=1}^{n} x'_i G_i \xrightarrow{r} \sum_{i=1}^{n} x''_i G_i \qquad (33)$$

où les x' et les x''_i sont des coefficients stoechiométriques éventuellement nuls.

Si l'on considère les molécules comme des sphères élastiques, et si la vitesse de la réaction r dépend uniquement de la température, alors elle est donnée par la loi d'Arrhénius :

$$k_r = BT^{\alpha} e^{-\frac{E_A}{RT}} \qquad (34)$$

où BT^{α} est un facteur de fréquence (en s^{-1}), qui, dans beaucoup de réactions est mal connu, ce qui limite le traitement numérique des problèmes cinétiques. E_A est l'énergie d'activation (en $cal.mole^{-1}$) nécessaire à la réaction. R est la constante des gaz parfaits (en $cal.mole^{-1} K^{-1}$).

La production massique W_i par unité de temps du gaz G_i s'exprime alors par la relation :

$$W_i = M_i \frac{dC_i}{dt} = M_i (x''_i - x'_i) k_r \prod_{j=1}^{n} C_j^{x'_j} \qquad (35)$$

où C_i est la $i^{ème}$ concentration ($mole.cm^{-3}$) et M_i la $i^{ème}$ masse molaire ($g.mole^{-1}$).

La production molaire globale W_r de la réaction est alors

$$W_r = \prod_{j=1}^{n} C_j^{x'j} \qquad (36)$$

Pour un système multiréactif comportant R réactions, la production massique de la $i^{ème}$ espèce sera évidemment la somme des productions pour chaque réaction, soit :

$$W_i = \sum_{r=1}^{R} m_{ir}\, k_r \prod_{j=1}^{n} C_j^{x'jr} \qquad (37)$$

où x'_{jr} est le x'_j de la $r^{ème}$ réaction, et où $m_{ir} = M_i(x''_{ir} - x'_{ir})$.

Ces équations peuvent être représentées matriciellement sous la forme $\frac{dC}{dt} = MC$ (38)

où M est la matrice définie par :

M_{ij} = coefficient du $j^{ème}$ constituant dans $\frac{dC_i}{dt}$

A cela il faut ajouter les équations linéaires de conservation de la masse et de chacun des éléments qui sont de la forme

$$NC = b \qquad (39)$$

bi est la concentration du $i^{ème}$ élément et N_{ij} le nombre d'atomes du $i^{ème}$ élément dans une mole du $j^{ème}$ constituant.

Les équations (38) et (39), compte tenu de (37), permettent de calculer à tout moment la composition du mélange multiréactif.

Pour plus de détails, nous renvoyons le lecteur à [1] ou [9]

I - 4.2. Cas de l'équilibre

Avec la présentation que nous avons faite, l'équilibre chimique devient un cas particulier de notre problème général. On a deux réactions inverses :

$$\sum_{i=1}^{n} x'_i G_i \xrightarrow{\text{direct}} \sum_{i=1}^{n} x''_i G_i \quad \text{et} \quad \sum_{i=1}^{n} x''_i G_i \xrightarrow{\text{inverse}} \sum_{i=1}^{n} x'_i G_i$$

On définit alors une constante d'équilibre $K_e = \dfrac{k \text{ direct}}{k \text{ inverse}}$

La production de la réaction directe étant égale à la production de la réaction inverse, on a, d'après (36)

$$\prod_{i=1}^{n} C_i^{x''_i - x'_i} = \frac{k \text{ direct}}{k \text{ inverse}} = K_e \qquad (40)$$

Ke se calcule simplement à partir des fonctions thermodynamiques des constituants.

Le calcul des concentrations en fonction de la température se fait donc à partir des équations (39) et (40). C'est un problème qui est maintenant bien connu et qui peut se résoudre de plusieurs façons [1]. Nous avons réalisé un programme [9] qui réalise ce calcul, et qui pourrait donc permettre de calculer les écoulements à l'équilibre

I - 4.3. Classes de problèmes d'aérothermochimie [1]

Les réactions chimiques et plus généralement tous les changements d'état et de composition nécessitent un temps de processus caractéristique tp (souvent très mal connu).

Les écoulements définissent un temps mécanique tm qui est par exemple le temps de séjour des molécules dans un réacteur.

Le rapport de ces deux temps est le paramètre de DAMKOHLER $D_I = \frac{t_p}{t_m}$.
C'est en gros la valeur de ce paramètre qui détermine le type d'écoulement que l'on rencontre.

- Si $D_I >> 1$, les réactions chimiques n'ont pas le temps de se produire dans le fluide. On dit que l'écoulement est figé. On est alors dans le domaine de l'aérodynamique. Les variations de composition entre les différentes zones de l'écoulement se font par diffusion. Ce type d'écoulement est bien connu.

- Si $D_I << 1$, tous les processus ont le temps de se dérouler entièrement. On est dans le cas d'écoulement à l'équilibre. Ce type d'écoulement est assez bien connu, surtout dans le cas unidimensionnel.

- Si $D_I \simeq 1$, diffusion et cinétique se concurrencent. On dit que l'écoulement est relaxé. C'est le type d'écoulement le plus compliqué.

On peut rencontrer plusieurs de ces trois types d'écoulements dans un même problème.

Notre problème se situe entre le premier et le troisième. La cinétique de la réaction $M_oF_6 + 3H_2 \rightarrow M_o + 6HF$ est très lente tant que la température n'est pas vraiment élevée, mais elle est catalysée par la paroi du substrat.

En résumé, la réaction est totale sur le substrat et partielle dans un film gazeux beaucoup plus mince que les couches limites thermique et diffusionnelle.

Dans nos calculs, nous négligeons ce film gazeux, ce qui nous permet de décomposer notre domaine en deux zones :

- la veine gazeuse où l'écoulement est figé
- la paroi du substrat où la réaction est totale.

La réaction chimique intervient donc uniquement comme condition limite. L'apport des réactifs par la veine gazeuse est contrôlé par la diffusion.

C'est une hypothèse classique, qui a été également faite par les auteurs que nous avons cités en introduction.

I - 5. MISE EN EQUATIONS DE NOTRE PROBLEME

Rappelons la géométrie de notre réacteur. Le réacteur est composé d'un tube en quartz de rayon intérieur r_2. A l'intérieur se trouve un cyclindre concentrique de rayon r_1 composé de deux parties :

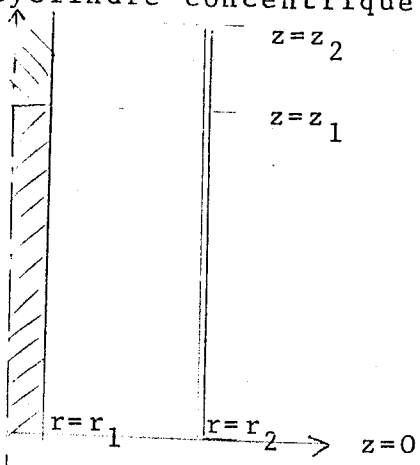


Figure 2

- le substrat ($z_1 \leqslant z \leqslant z_2$), qui est chauffé par induction électromagnétique à une température que l'on mesure par pyrométrie.
- le prolongement ($0 \leqslant z \leqslant z_1$) qui est en alumine.

Nous envoyons un courant de gaz ascendant à la vitesse moyenne Uo. Ce courant sera composé d'un mélange d'hydrogène H_2, d'hexafluorure de molybdène MoF_6, et d'argon Ar auxquels nous donnerons respectivement les indices 1, 3 et 4. L'indice de l'acide fluorhydrique HF, produit de la réaction $MoF_6 + 3\ H_2 \longrightarrow Mo + 6HF$, sera donc 2.

I - 5.I. Hypothèses simplificatrices

Bien que nous traitions un problème assez général, nous avons dû faire de nombreuses hypothèses, et nous ne sommes pas certains qu'elles soient rigoureusement vérifiées, en particulier les hypothèses relatives au transfert de masse.

Une hypothèse générale que nous pourrons nous permettre sans souci est l'hypothèse de la couche limite. Pour toute variable f du problème, nous pourrons négliger $\frac{\partial^2 f}{\partial z^2}$ par rapport à $\frac{\partial^2 f}{\partial r^2}$, du fait de la géométrie très allongée de notre réacteur et du fait que $Gr > 10^4$. Cette hypothèse nous permet aussi de supposer la pression indépendante de r.

I - 5.1.1. Hypothèses aérodynamiques

Nous supposons le nombre de Mach très inférieur à 1. L'écoulement est donc incompressible au sens le plus large, mais non indilatable. (Pour certains auteurs, incompressible équivaut à $\bar{\nabla}.\bar{V} = 0$, ce qui est vrai pour un fluide de Boussinesq, mais pas dans notre cas). Notons que cette hypothèse est un peu gênante pour le chimiste qui travaille volontiers à basse pression. Nous supposons la pression supérieure à 0.01 atmosphère.

Nous supposons l'écoulement laminaire, c'est-à-dire Re < 2000 puisqu'on est en écoulement de type cylindrique. Nous définissons Re par $Re = \frac{2(r_2-r_1)U_o\rho_o}{\mu_o}$, r_1 et r_2 étant les rayons intérieur et extérieur, et U_o la vitesse moyenne à l'entrée du réacteur.

I - 5.1.2. Hypothèses thermiques

Nous supposons la température constante dans le substrat ($r < r_1$, $z_1 < z < z_2$). Dans le prolongement, elle dépendra de z, mais non de r.

Nous supposons la paroi extérieure refroidie à la température ambiante T_o.

Nous supposons enfin les gaz parfaitement transparents au rayonnement thermique, car leur coefficient d'absorption est nul en dehors de bandes étroites ou il est faible.

Les flux de chaleur produits par effet Dufour et par la production enthalpique issue de la réaction chimique seront suffisamment faibles devant le flux émis par le substrat pour être négligés, compte tenu de nos concentrations dans la veine gazeuse.

I - 5.1.3. Hypothèses sur le transfert de masse.

Nous supposons que la réaction $M_oF_6 + 3H_2 \rightarrow M_o + 6HF$, qui est une réaction catalytique, est limitée à la paroi où elle est totale.

Nous négligeons l'effet Soret (diffusion thermique) qui est, la plupart du temps, négligeable dans les gaz.

I - 5.2. Equations

Toutes les quantités sont maintenant adimensionnelles, sauf précision contraire. Nous avons abandonné les astérisques pour plus de simplicité.

I - 5.2.1. Avec l'hypothèse de la couche limite et les variables U et V.

Compte tenu de tout ce que nous avons supposé, les équations (29), (30), (31), (32), se transforment en :

$$\rho u \frac{\partial v}{\partial r} + \rho v \frac{\partial v}{\partial z} = - \frac{dP}{dz} + \frac{1}{rRe} \frac{\partial}{\partial r} (\mu r \frac{\partial v}{\partial r}) - \frac{\rho}{Fr} \qquad (41)$$

$$\frac{\partial}{\partial r}(\rho ru) + \frac{\partial}{\partial z}(\rho rv) = 0 \qquad (42)$$

$$\rho u \frac{\partial (CpT)}{\partial r} + \rho v \frac{\partial (CpT)}{\partial z} = \frac{1}{rRePr} \frac{\partial}{\partial r}(\lambda r \frac{\partial T}{\partial r}) \qquad (43)$$

$$\rho u \frac{\partial Yi}{\partial r} + \rho v \frac{\partial Yi}{\partial z} = \frac{1}{rReSc} \frac{\partial}{\partial r} (\rho Dir \frac{\partial Yi}{\partial r}) \quad \text{pour } i = 1..,n-1 \qquad (44)$$

On n'écrit pas la nème équation de type (44) puisque $\sum_{i=1}^{i=n} Yi = 1$.

Dans notre cas, n sera égal à 3 ou 4 suivant que l'on utilisera les réactifs purs ou dilués dans un gaz porteur neutre (l'Argon). Ces équations sont de type parabolique. Mais nous verrons au chapitre II que l'on peut avoir besoin d'une formule elliptique plus compliquée, mais plus puissante.

I - 5.2.2. Avec les variables ψ et ω sans hypothèse de la couche limite.

Il est avantageux dans le cas bidimensionnel d'introduire la fonction de courant ψ et la vorticité ω en posant :

$$\frac{\partial \psi}{\partial r} = \rho r v \qquad (45) \qquad\qquad \frac{\partial \psi}{\partial z} = - \rho r u \qquad (46)$$

$$\omega = \frac{\partial u}{\partial z} - \frac{\partial v}{\partial r} \qquad (47)$$

Cette formulation a l'avantage d'éliminer la pression des équations, et d'éliminer aussi l'équation (42) qui est automatiquement vérifiée. Elle a l'inconvénient de compliquer les conditions aux limites, et les équations aussi quand les propriétés physiques sont variables.

De la définition de ψ et ω, nous tirons immédiatement l'équation de définition de ψ :

$$\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{1}{\rho r}\frac{\partial \psi}{\partial r}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{1}{\rho r}\frac{\partial \psi}{\partial z}\right) = -\omega \qquad (48)$$

Pour obtenir la seconde équation du mouvement, on prend le rotationnel de l'équation $\rho\frac{d\bar{V}}{dt} = -\bar{\nabla}P + \bar{\nabla}.\bar{\bar{T}} + \rho\bar{g}$ (15) que nous avons vue au I-1.4, ce qui élimine P puisque le rotationnel d'un gradient est nul. Nous renvoyons le lecteur au livre de GOSMAN et al. [10] où les calculs sont faits dans le cas le plus général. L'équation adimensionnelle de la vorticité s'écrit dans notre cas :

$$\frac{\partial}{\partial r}(\rho u\omega) + \frac{\partial}{\partial z}(\rho v\omega) = \frac{1}{Re}\left[\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}(\mu r\omega)\right) + \frac{\partial^2}{\partial z^2}(\mu\omega)\right] + \frac{1}{Fr}\frac{\partial \rho}{\partial r} + S(\omega) \qquad (49)$$

avec

$$S(\omega) = \frac{\partial \rho}{\partial r}\frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{u^2+v^2}{2}\right) - \frac{\partial \rho}{\partial z}\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{u^2+v^2}{2}\right) + \frac{1}{Re}\left[-\frac{\partial \mu}{\partial r}\frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{\partial u}{\partial r}+\frac{\partial v}{\partial z}+\frac{u}{r}\right) + \frac{\partial \mu}{\partial z}\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{\partial u}{\partial r}+\frac{\partial v}{\partial z}+\frac{u}{r}\right) - \frac{\partial^2 \mu}{\partial z^2}\frac{\partial v}{\partial r} - \frac{\partial^2 \mu}{\partial r^2}\frac{\partial v}{\partial z} + \frac{\partial^2 \mu}{\partial r \partial z}\left(\frac{\partial u}{\partial r}+\frac{\partial v}{\partial z}\right)\right] \qquad (50)$$

Le terme source $S(\omega)$ défini par l'équation (50) est négligé par la quasi-totalité des utilisateurs qui supposent le fluide de Boussinesq. Il comprend :

Les termes 1 et 2 dûs à la variation de ρ dans les termes convectifs de l'équation (15).

Les termes 3 à 7 dûs à la variation de μ dans les termes diffusifs de l'équation (15).

Ce terme source semble d'une complexité effarante. En fait, nous verrons qu'il ne pose pas de problème numérique ne contenant pas l'inconnue ω. Quant au temps machine, il est bien inférieur à celui qu'entraîne le calcul des propriétés physiques.

Nous avons constaté que ce terme n'est pas du tout négligeable dans le cas de forts gradients de température.

Nous ne récrivons pas les équations de l'énergie et de conservation des espèces chimiques. Ce sont les équations (43) et (44) auxquelles on ajoute respectivement $\frac{1}{RePr} \frac{\partial}{\partial z} (\lambda \frac{\partial T}{\partial z})$ et $\frac{1}{ReSc} \frac{\partial}{\partial z} (\rho D_i \frac{\partial Y_i}{\partial z})$ pour $i = 1, \ldots n - 1$ dans le 2ème membre.

I - 5.3. Conditions aux limites

I - 5.3.I. Conditions aérodynamiques

Sur les parois on prend les conditions classiques $u = 0$, $v = 0$, qui expriment que le gaz ne glisse pas contre la paroi et ne traverse pas la paroi, sauf sur la paroi du substrat. Nous verrons au I-5.3.4 que u n'est alors pas nul puisque l'on a un flux de matière vers la paroi.

Quand on prend comme variables ψ et ω, on aura ψ constant sur chaque paroi, sauf sur la paroi du substrat où l'on aura $\frac{\partial \psi}{\partial z} = - \rho r u$. Pour ω, on prend comme cela se fait en général [10] l'hypothèse de la couche limite, et l'on néglige $\frac{\partial u}{\partial z}$ devant $\frac{\partial v}{\partial r}$, ce qui nous donne en récrivant (45)

$$\frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{1}{\rho r} \frac{\partial \psi}{\partial r}\right) = - \omega \quad \text{pour } r = r_1 \text{ et } r = r_2 \qquad (51)$$

A l'entrée du réacteur, les conditions sont plus incertaines. Le profil de vitesses de v_e est intermédiaire entre le profil plat v_e = constante et le profil d'écoulement établi que nous verrons au II-2.I. En fait, le réacteur est suffisamment long pour que ce profil initial n'ait pas d'influence dans la zone qui nous intéresse. Nous avons donc pris l'écoulement établi, ce qui simplifie notre problème numérique. v_e étant connu, u_e étant supposé nul, on en déduit facilement ψ et ω à partir des équations (45) et (47).

On doit aussi se préoccuper de ce qui se passe à la sortie du réacteur si on fait le calcul dans le cas elliptique (II-5). Le problème est beaucoup plus épineux. La moins mauvaise solution semble de supposer que l'écoulement est établi, hypothèse que nous avons comparée avec les résultats du II-2.2. dans le cas d'un gaz pur. Avec cette hypothèse, on a :

$$\left(\frac{\partial \psi}{\partial z}\right)_s = 0 \qquad (52) \quad \text{et} \quad \left(\frac{\partial \omega}{\partial z}\right)_s = 0 \qquad (53)$$

I - 5.3.2. Conditions thermiques

L'entrée du réacteur et la paroi extérieure sont à la température froide To. Donc $T_e = T_2 = T_o$.

Le substrat est à une température constante $T_\sigma = T_{max}$ pour $z_1 < z < z_2$.

Nous supposerons, s'il y a lieu, qu'à la sortie

$$\left(\frac{\partial T}{\partial z}\right)_s = 0 \qquad (54)$$

Il reste à régler le problème du prolongement du

substrat. Tout d'abord, on suppose que le bas est à la température To et le haut à la température T_{max}. Entre les deux nous faisons le bilan thermique sur un cylindre représenté ci-contre. Supposons la température T_1 constante dans chaque section. Alors le flux de chaleur adimensionnel traversant la section du cylindre aux hauteurs h et h + Δz est respectivement

$$\Phi_h = \Pi r_1^2 \times (\lambda_a \frac{dT_1}{dz})_{z=h} \quad \text{et}$$

$$\Phi_{\Delta z+h} = \Pi r_1^2 \times (\lambda_a \frac{dT_1}{dz})_{z=h+\Delta z}$$

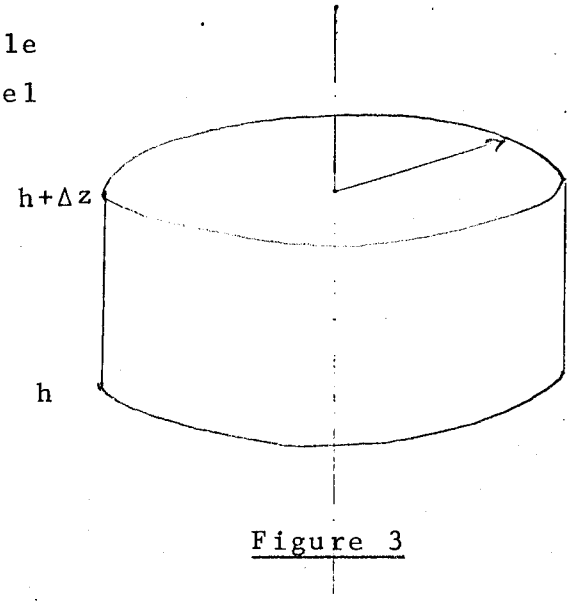


Figure 3

λ_a est la conductivité thermique de l'alumine divisée par la conductivité caractéristique λ_o (tout est toujours adimensionnel). λ_a suit une loi du type :

$$\lambda_a = a + be^{-cT_1} \qquad (55)$$

Cette loi est bien entendu une formule approximative que nous avons ajustée aux valeurs numériques fournies par [11].

. Le flux de chaleur adimensionnel sortant par la paroi de ce cylindre est égal à

$\Phi = -2\Pi r_1 \Delta z \times (\lambda \frac{\partial T}{\partial r})_{z=h+k\Delta z}$, k étant un nombre compris entre 0 et 1, λ et T étant maintenant pris dans le gaz. Le bilan thermique s'écrit $\Phi = \Phi_{\Delta z+h} - \Phi_h$, soit

$$\left(\lambda_a \frac{dT_1}{dz}\right)_{z=h+\Delta z} - \left(\lambda_a \frac{dT_1}{dz}\right)_{z=h} = -\frac{2\Delta z}{r_1} \times \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial r}\right)_{z=h+k\Delta z}$$

Si nous faisons tendre Δz vers 0, nous obtenons à la limite :

$$\lambda_a \frac{d^2T_1}{dz^2} = -\frac{2}{r_1} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial r}\right)_1 \qquad (56)$$

C'est une condition peu banale, et qui va nous compliquer la tâche comme nous le verrons au (II-4).

I - 5.3.3. Conditions sur la composition chimique

A l'entrée du réacteur, on envoie les gaz réactifs H_2 et $Mo\,F_6$, et éventuellement le gaz inerte Ar, supposés parfaitement mélangés, avec des fractions massiques $(Y_1)_e$, $(Y_3)_e$ et $(Y_4)_e$. $(Y_2)_e = 0$. On supposera l'hydrogène en excès, c'est-à-dire:

$$\frac{(Y_1)_e}{M_1} > \frac{(Y_3)_e}{M_3}$$

Sur la paroi extérieure et sur la paroi intérieure, en-dessous du substrat, on prendra les mêmes conditions.

Sur le substrat, on suppose la réaction totale. Donc $(Y_3)_\sigma = 0$. On a une deuxième condition avec la relation $Y_1+Y_2+Y_3+Y_4 = 1$.

Il manque encore deux conditions qui déterminent les rapports des flux massiques $\rho_1\bar{U}_1$ à $\rho_4\bar{U}_4$ ou molaires $\bar{N}_1$ à $\bar{N}_4$ en fonction des coefficients stoechiométriques de la réaction.

U_1, U_2, U_3, U_4 sont les vitesses radiales absolues des gaz à la paroi. Elles sont données par la relation:

$$U_i = u - \frac{D_i}{R_e S_c} \left(\frac{\partial Y_i}{\partial r}\right)_\sigma \quad \text{qui découle de (11)}$$

Le gaz inerte ne réagissant pas, son flux massique à la paroi est nul. Donc $N_4 = U_4 = 0$.

La réaction chimique s'écrivant $MoF_6 + 3H_2 \longrightarrow Mo + 6HF$, les flux molaires vérifient la relation: $6\bar{N}_3 = 2\bar{N}_1 = -\bar{N}_2$.

Donc les flux massiques vérifient la double égalité:

$$\frac{6}{M_3}\left(Y_3\, u - \frac{D_3}{R_e S_c}\left(\frac{\partial Y_3}{\partial r}\right)_\sigma\right) = \frac{2}{M_1}\left(Y_1 u - \frac{D_1}{R_e S_c}\left(\frac{\partial Y_1}{\partial r}\right)_\sigma\right) = -\frac{1}{M_2}\left(Y_2 u - \frac{D_2}{R_e S_c}\left(\frac{\partial Y_2}{\partial r}\right)_\sigma\right) \quad (57)$$

I- 5.3.4. Condition d'interface sur le substrat

Le substrat s'épaissit à une vitesse négligeable à l'échelle où nous travaillons. On pourra donc assimiler la couche à une surface sans épaisseur, mais dont la densité surfacique croît avec le temps, en puisant de la masse dans la veine gazeuse.

Nous allons voir que la présence de ce puit de masse entraîne une vitesse radiale à la paroi u_σ non nulle.

On peut établir des équations de bilan du genre présenté au I-1 avec une interface qui est une surface singulière. C'est un problème compliqué dans le cas général [1].

Nous nous contentons ici de bilans propres à notre problème.

Bilan de l'hexafluorure. Rappelons que l'indice de M_oF_6 est 3. Nous supposons que tout l'hexafluorure fourni au substrat est immédiatement consommé par la réaction. Ce qui nous donne une première équation:

$$\rho_3 U_3 = W_3$$

où U_3 et W_3 sont la vitesse absolue et la production négative de M_oF_6 par unité de temps. Nous décomposerons U_3, comme nous l'avons fait au I-1-2, en vitesse barycentrique U et vitesse de diffusion $u_3 = -\frac{1}{Re\,S_c}\,\frac{D_3}{Y_3}\,(\frac{\partial Y_3}{\partial r})_\sigma$ (tout est ici adimensionnel).

L'équation précédente se transforme alors en:

$\rho_3\,U - \frac{1}{R_e S_c}\,\rho D_3 (\frac{\partial Y_3}{\partial r})_\sigma = W_3$, et comme ρ_3 est nul à la paroi,

$$-\frac{1}{R_e S_c}\,\rho D_3 (\frac{\partial Y_3}{\partial r})_\sigma = W_3 \qquad (58)$$

En lisant (58), on voit bien ce que signifie l'expression "réaction contrôlée par la diffusion". Le taux de M_oF_6 qui réagit est égal au flux de diffusion de M_oF_6 à la paroi.

Bilan global de la masse. Soient M_3 et M_S les masses molaires de M_oF_6 et de M_o. Si la masse (adimensionnelle) de M_oF_6 consommé est W_3, la masse de M_o produit est $W_S = -W_3 \times \frac{M_S}{M_3}$.

Soit $(U)_\sigma$ la vitesse barycentrique radiale à la paroi. L'équation de continuité à la paroi s'énonce ainsi : "La quantité $-W_S$ de masse perdue par le fluide est égale au débit massique du gaz à la paroi, soit $(\rho U)_\sigma$

Donc : $$(\rho U)_\sigma = W_3 \frac{M_S}{M_3} \qquad (59)$$

Si nous voulons l'expression de $(U)_\sigma$, il suffit d'éliminer W_3 entre (58) et (59) pour obtenir :

$$(U)_\sigma = -\frac{1}{R_e S_c}\,\frac{M_S}{M_3}\,D_3\,(\frac{\partial Y_3}{\partial r})_\sigma \qquad (60)$$

Cette condition limite dépend donc de la solution de l'équation (44). On peut remarquer qu'il en est de même pour ω (51) dont la valeur à la paroi dépend de la solution de (48).

Si nous voulons calculer le nombre de Sherwood, il faut calculer la vitesse de dépôt U_s, et pour cela écrire de deux façons le débit massique à la paroi dans (59).

$$(\rho U)_\sigma = \rho_s U_s = W_3 \frac{M_S}{M_3}$$

$$\text{Donc } U_S = (U)_\sigma \times \frac{\rho}{\rho_s} = - \frac{1}{ReSc} \frac{\rho}{\rho s} \frac{M_s}{M_3} D_3 \left(\frac{\partial Y_3}{\partial r}\right)_\sigma$$

U_s est une vitesse adimensionnelle, rapportée à la vitesse U_o. Le coefficient de transfert de masse dimensionnel est donc

$$k_s = U_S \times U_o$$

Le nombre de Sherwood rapporte cette vitesse de transfert à une vitesse caractéristique de la diffusion $\frac{D_o}{l_o}$.

On retrouve la formule $Sh = \frac{k_s l_o}{Do}$ qui avait été annoncée au I-3.

On a donc en définitive:

$$Sh = \left(\frac{\rho}{\rho_s} \frac{M_s}{M_3} D_3 \frac{\partial Y_3}{\partial r} \right)_\sigma$$

(D_3 et r sont adimensionnels).

BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE I

[1] M. BARRERE ET R. PRUDHOMME "Equations fondamentales de l'aérothermochimie"
Masson, Paris 1973.

[2] A. CRAYA "Mécanique des transferts dans les fluides"
Cours polycopié ENSHG (1961)

[3] J.O. HIRSCHFELDER, C.F. CURTISS et R.B. BIRD
"Molecular theory of gases and liquids"
John Wiley and Sons, New-York (1954)

[4] R.C. REID ET T.K. SHERWOOD
The properties of gases and liquids (2° ed.)
Mac Graw-Hill, New-York (1966)

[5] Y.S. TOULOUKIAN, P.E. LILEY ET S.C. SAXENA
Thermal conductivity.Non metallic liquids and gases
IFI Plenum, Washington (1970).

[6] WILKE C.R.
Chemical engineering progress 46 : 95 (1950)

[7] MAZILLE J.E. déjà cité en introduction [3]

[8] P. VAY Thèse chimie, Grenoble (1972)

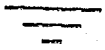
[9] N. VALIGNAT, F. DURAND ET E. BONNIER
Méthode générale de traitement des équilibres chimiques complexes par le calcul automatique.
Génie Chimique, vol 96 N° 2 (1966)

[10] A.D. GOSMAN, W.M. PUN, A.K. RUNCHAL, D.B. SPALDING et M. WOLFSHTEIN - Heat and Mass transfer in recirculating flows. Academic Press, London (1969)

[11] Y.S. TOULOUKIAN, R.W. POWELL, C.Y. HO et P.G. KLEMENS
Thermal conductivity. Non metallic solids. IFI Plenum
Washington (1970)

CHAPITRE 2

RESOLUTION NUMERIQUE



II - 1 INTRODUCTION

Pour un mélange de n gaz, nous avons à résoudre un système de n + 2 équations aux dérivées partielles couplées non linéairement, qui peut se formuler de deux façons:

1°) Formulation parabolique. Les fonctions recherchées sont u, v, T et les Y_i. Elles sont fournies par les équations de continuité: $\frac{\partial}{\partial r}(\rho ru) + \frac{\partial}{\partial z}(\rho rv) = 0$ (42)

mouvement: $\frac{\partial}{\partial r}(\rho uv)+\frac{\partial}{\partial z}(\rho v^2)=-\frac{dP}{dz}+\frac{1}{rRe}\frac{\partial}{\partial r}(\mu r\frac{\partial v}{\partial r})-\frac{\rho}{Pr}$ (

énergie : $\frac{\partial}{\partial r}(\rho uCpT)+\frac{\partial}{\partial z}(\rho vCpT) = \frac{1}{rRePr}\frac{\partial}{\partial r}(\lambda r\frac{\partial T}{\partial r})$ (43

diffusion: $\frac{\partial}{\partial r}(\rho uY_i)+\frac{\partial}{\partial z}(\rho vY_i)=\frac{1}{rReSc}\frac{\partial}{\partial r}(\rho D_i r\frac{\partial Y_i}{\partial r})$ (44

Pour i = 1 à n-1. On ne répond pas à la 4ème équation de type (44) puisque $Y_n = 1 - \sum_{i=1}^{n-1} Y_i$

2°) Formulation elliptique. Les fonctions récherchées sont ψ, ω, T et les Y_i. ψ et ω sont définies par:

$\frac{\partial\psi}{\partial r} = \rho rv$ (45), $\frac{\partial\psi}{\partial z} = -\rho ru$ (46) et $\omega = \frac{\partial u}{\partial z} - \frac{\partial v}{\partial r}$ (47)

Les équations (41) et (42) sont alors remplacées par:

l'équation de définition de ψ:

$$\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{1}{\rho r}\frac{\partial\psi}{\partial r}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{1}{\rho r}\frac{\partial\psi}{\partial z}\right) = -\omega \quad (48)$$

l'équation du tourbillon:

$$-\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{\omega}{r}\frac{\partial\psi}{\partial z}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{\omega}{r}\frac{\partial\psi}{\partial r}\right) = \frac{1}{Re}\left(\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}(\mu r\omega)\right) + \frac{\partial^2(\mu\omega)}{\partial z^2}\right) +$$

$$\frac{1}{Fr}\frac{\partial\rho}{\partial r} + S(\omega) \quad (49)$$

Nous n'écrivons pas les équations de l'énergie et de la diffusion qui s'obtiennent à partir de (43) et (44) en remplaçant u et v par leurs expressions en fonction de ψ et en ajoutant au second membre le terme faisant intervenir les dérivées par rapport à z qui est négligé dans l'hypothèse de la couche limite.

On calcule le ρadimensionnel à partir des formules (1) et (4). On obtient : $\frac{1}{\rho} = T \times \Sigma \frac{Y_i}{M_i}$
où M_i est une masse molaire adimensionnelle ($i^{ème}$ masse molaire divisée par la masse molaire de référence).

Pour μ , λ et D_i nous avons les formules semi-empiriques

$$\mu = \sum_i \frac{\mu_i}{1+\sum_{j\neq i} \phi_{ij} \frac{X_j}{X_i}} \qquad (26) \qquad \lambda = \sum_i \frac{\lambda_i}{1+0.85 \sum_{j\neq i} \phi_{ij} \frac{X_j}{X_i}} \qquad (27)$$

$$Di = \frac{1 - X_i}{\sum_{j\neq i} X_j / D_{ij}} \qquad (28)$$

X_i, ϕ_{ij} et D_{ij} sont définis au I-2.3.

On a vu au I-5.2. la formule (50) qui permet de calculer $S(\omega)$. Rappelons qu'elle fait intervenir les dérivées de μ, deρ et des vitesses u et v.

Les conditions aux limites sont détaillées au I-5.3. On a une condition de Dirichlet à l'entrée où toutes les fonctions sont connues.

Sur la paroi extérieure, on a également des conditions de Dirichlet, mais sur la paroi intérieure on a des conditions plus complexes faisant intervenir des dérivées normales et tangentielles (I-5-3).

A la sortie, on suppose s'il y a lieu que les dérivées axiales sont nulles.

On ne sait pas démontrer l'existence et l'unicité de la solution de ce problème, sauf dans certains cas bien particuliers (Lions [1]. Cas isotherme). La solution du problème stationnaire est la limite lorsque t tend vers l'infini de celle du problème mixte de Cauchy $\rho \frac{d\bar{V}}{dT} = -\bar{\nabla} p + \bar{\nabla}\bar{\bar{T}} + \rho \bar{g}$ (15) avec les mêmes conditions aux limites. Or, on sait bien que pour Re > 2000 il n'y a pas d'écoulement laminaire permanent stable. Notre capacité de débit nous limitant à Re = 1800, nous supposerons que notre problème a bien une solution unique.

Dans le cas d'un canal infiniment long (cas asymptotique), les fonctions ne dépendent plus de z et on a de simples équations différentielles dont on connaît la solution :

- analytique dans le cas d'un gaz pur isotherme
- par simple quadrature dans le cas d'un gaz pur non isotherme.

Ces solutions nous intéressent car elles permettent, dans certains cas, de connaître les fonctions à l'entrée et à la sortie du domaine de calcul. Nous les étudierons au paragraphe 2.

Après une introduction sur les schémas aux différences finies (paragraphe 3), nous verrons au paragraphe 4

la résolution numérique du problème parabolique avec l'hypothèse de la couche limite. La méthode est rapide, mais fait partiellement appel aux résultats du paragraphe 5.

Au paragraphe 5 nous résolvons le problème elliptique complet.

On verra que la méthode la plus performante combine l'utilisation des paragraphes 2, 4 et 5.

II- 2. SOLUTIONS ASYMPTOTIQUES. On appelle solution asymptotique la limite, si elle existe, de la solution du problème lorsque z tend vers l'infini.

II - 2.I. Température et composition chimique uniformes

C'est le cas qui devrait se produire à l'entrée de notre zone de calcul si le réacteur est suffisamment long. Alors $u = 0$, $\frac{\partial v}{\partial z} = 0$ et le gradient de pression $\frac{dP}{dz}$ est constant. T et les Y_i sont également constants. La seule équation à résoudre est (41), qui se résume à :

$$-\frac{dP}{dz} + \frac{1}{rRe}\frac{d}{dr}\left(r\frac{dv}{dr}\right) - \frac{1}{Fr} = 0$$

donc $\frac{1}{r}\frac{d}{dr}\left(r\frac{dv}{dr}\right) = Re\left(\frac{dP}{dz} + \frac{1}{Fr}\right) = K$ constant

donc $\frac{d}{dr}\left(r\frac{dv}{dr}\right) = Kr$

donc $r\frac{dv}{dr} = K\int_{r_1}^{r} x\,dx$

$$\frac{dv}{dr} = \frac{K}{2}\left(r - \frac{r_1^2}{r}\right)$$

$$v(r) = \frac{K}{2}\left[\frac{x^2}{2} - r_1^2 \operatorname{Log} x\right]_{r_1}^{r}$$

Pour calculer K, on écrit que le débit est :

$$\int_{r_1}^{r_2} v(r)\, dr = \int_{r_2}^{r_2} 1\, dr = r_2 - r_1$$

puisque la vitesse moyenne adimensionnelle est 1.(I-3). On a donc une solution analytique explicite $v(r) = ar^2 + b\text{Log } r + c$ qui donne la vitesse axiale v et le gradient de pression $\frac{dP}{dz}$.

Nous l'adopterons comme condition initiale pour l'écoulement. Si l'on utilise ψ et ω, on aura

$$\psi(r) = \int_{r_1}^{r} v\ (x)\ dx \text{ et } \omega(r) = -\frac{dv}{dr}$$

connues analytiquement.

II - 2.2. Composition chimique uniforme

T est maintenant variable, mais $\frac{\partial T}{\partial z} = 0$. Donc (41) et (43) s'écrivent:

$$-\frac{dP}{dz} + \frac{1}{Re}\left(\frac{1}{r}\frac{d}{dr}\left(\mu r \frac{dv}{dr}\right)\right) - \frac{\rho}{Fr} = 0 \qquad (41)$$

$$\frac{1}{rRePr}\ \frac{d}{dr}\left(\lambda r \frac{dT}{dr}\right) = 0 \qquad (43)$$

Les conditions aux limites sont :

pour (41) $v = 0$ pour $r = r_1$ et $r = r_2$

pour (43) $T = T_1$ pour $r = r_1$ et $T = T_2$ pour $r = r_2$

La conductivité thermique est une fonction de T, qui, suivant les cas est de la forme :

$\lambda(T) = T^{\alpha}$ ou $bT + c$ ou $aT^2 + bT + c$

donc (43) se résume à :

$\lambda(T) \frac{dT}{dr} = \frac{K}{r}$ avec K constante déterminée par une intégration entre r_1 et r_2

$$\int_{T_1}^{T_2} \lambda(T)\, dT = \int_{r_1}^{r_2} \frac{K}{r}\, dr$$

Nous savons donc calculer la solution analytique pour T dans le cas de l'argon ($\lambda = T^{\alpha}$) et de l'hydrogène ($\lambda = b\,T+c$). Dans le premier cas $\frac{T^{\alpha+1}}{\alpha+1} = K \text{ Log } \frac{r}{r_1}$, ce qui détermine T en fonction de r. Dans le second cas, $\left[b\frac{T^2}{2} + CT\right]_{T_1}^{T} = K \text{ Log } \frac{r}{r_1}$.
T est la solution positive d'une équation du second degré. Elle est donc déterminée univoquement. Pratiquement, seuls ces cas nous intéressent puisque l'on résoudra le problème à un seul gaz pour le gaz porteur qui est soit l'argon, soit l'hydrogène.

Il reste à résoudre (41) après avoir remplacé μ et ρ par leur expression en fonction de T. On procède comme au II-2-1, mais cette fois-ci les intégrales ne sont plus connues analytiquement et on utilise une méthode d'intégration numérique.

En conclusion de ce paragraphe, nous dirons que l'établissement de ces solutions asymptotiques avec propriétés physiques variables, s'il n'est pas une grande découverte, nous a été très utile pour tester nos méthodes numériques dans le cas d'un gaz pur.

On pourrait calculer de manière analogue la solution asymptotique dans le cas d'un mélange binaire isotopique, car les coefficients de transport ne dépendent que de la température. Mais avec un mélange binaire non isotopique, à fortiori multicomposant, les coefficients de transport varient avec les concentrations (I.2.2.) et on n'a plus de solutions aussi simples.

II - 3. METHODES AUX DIFFERENCES FINIES

Ce paragraphe est destiné aux non spécialistes, sauf peut-être le II - 3.8.

II - 3.1. Maillage

Sur notre domaine D, qui est un rectangle, nous définissons un maillage, non nécessairement régulièrement espacé, par des lignes parallèles aux axes (on a intérêt à resserer le maillage dans les zones à forts gradients en particulier les parois). Nous appelons noeuds du maillage les intersections de ces lignes situées dans le domaine D.

C'est en ces noeuds que nous allons rechercher des valeurs approchées des fonctions solutions de notre problème.

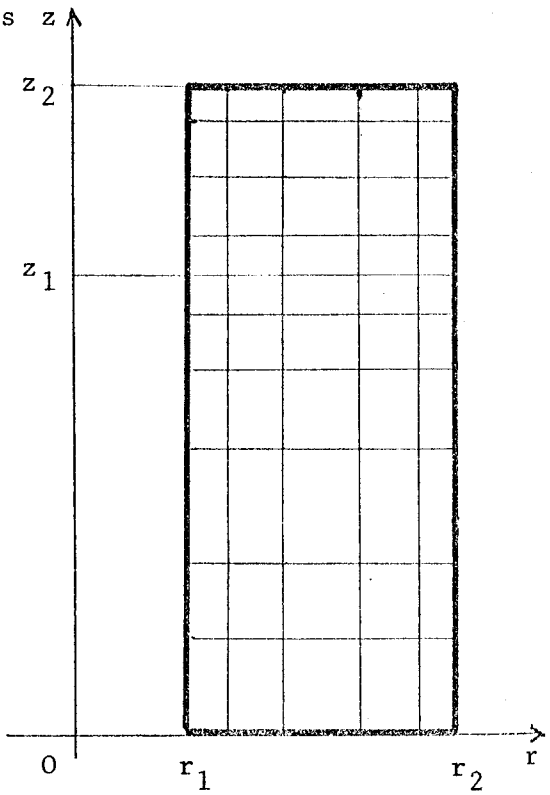


Figure 6: maillage

II - 3.2. Convergence

Nous remplaçons notre problème aux dérivées partielles (P) par une approximation (P_h) qui est un système d'équations non linéaires dont le nombre d'inconnues N est égal au nombre de noeuds du maillage.

Soient y et y_h les solutions de (P) et (P_h), supposées uniques. y et y_h appartiennent respectivement à des espaces vectoriels U et U_h munis de normes $\| \quad \|_U$ et $\| \quad \|_{U_h}$ convenablement choisies (II-3.3).

On appelle opérateur de restriction l'opérateur r_h, de U dans U_h, qui à une fonction y de U associe ses valeurs aux noeuds du maillage.

On dira que l'approximation (P_h) est convergente si $\|r_h(y) - y_h\|_{u_h}$ tend vers zéro lorsque $h = \max(\Delta r, \Delta z)$ tend vers 0, Δr et Δz étant la distance maximale entre deux lignes voisines parallèles à Oz et Or.

II - 3.3. Choix des normes [2][3]

Nous cherchons à approcher le problème

$$(P)\begin{cases} L_o y = f_o & \text{pour } x = (r,z) \text{ appartenant à l'intérieur } \overset{o}{D} \text{ de D défini par } r_1<r<r_2,\ 0<z<z_2 \\ L_i y = f_i & \text{pour x appartenant à chacune des m parties } \mathcal{F}_i(D) \text{ de la frontière de D où l'on a le } i^{ème} \text{ type de condition limite.} \end{cases}$$

Par le problème :

$$(P_h)\begin{cases} L_{oh}\, y_h = f_{oh} & \text{pour x appartenant à } \overset{o}{D}_h, \text{ ensemble des noeuds contenus dans D.} \\ L_{ih} y_h = f_{ih} & \text{pour les noeuds appartenant à } \mathcal{F}_i(D) \quad (i=1,\dots m). \end{cases}$$

y et les f_i $(i = 0,\dots m)$ appartiennent à des espaces vectoriels U et Fi de dimension infinie munis de normes $\|\ \|_U$ et $\|\ \|_{Fi}$; y_h et les f_{ih} $(i = 0,\ m)$ appartiennent à des espaces vectoriels U_h et F_{ih} de dimension finie munis de normes $\|\ \|_{U_h}$ et $\|\ \|_{F_{ih}}$

Nous supposerons dans ce qui suit que les normes seront compatibles, c'est-à-dire que lorsque h tend vers zéro $\|r_h(y)\|_{Uh}$ tend vers $\|U\|_U$ et $\|r_{ih}(f_i)\|_{Fih}$ tend vers $\|f_i\|_{Fi}$ pour $i = 0,\dots m$, r_h et r_{ih} étant les restrictions de U et Fi à Uh et Fih.

II - 3.4. Consistance et ordre de l'approximation

On dira que le problème (P_h) est une approximation de (P) d'ordre p en r et d'ordre q en z si

$\| r_h(L_{iy}) - L_{ih}\, y_h \|_{Fih} < K_{ri}\, \Delta r^p + K_{zi}\, \Delta z^q$ pour $i = 0, \ldots m$,
K_{ri} et K_{zi} étant des constantes indépendantes de Δr et Δz.

On dira aussi que (Ph) est consistant à (P) si $p > 0$ et $q > 0$.

En général, on parle plutôt séparément de l'ordre de l'approximation du problème intérieur et de chacune des conditions aux limites. Par exemple, sur une frontière où la fonction est connue, on a une approximation d'ordre infini. Mais il est évident que l'on a intérêt à avoir le même ordre d'approximation partout.

II - 3.5. Stabilité de l'approximation

L'ordre de l'approximation nous donne le degré de parenté entre le problème (P_h) et le problème (P). Plus précisément, nous dirons qu'il nous permet de majorer $\| r_h (L_{iy}) - L_{ih}\, Yh \|_{Fih}$ en fonction de h.

Mais ce qui nous intéresse en réalité, c'est la parenté entre les solutions de (P_h) et (P), c'est-à-dire une majoration de $\| r_h(y) - y_h \|_{Uh}$, autrement dit la convergence.

Le lien entre ces deux majorations nous sera assuré par la stabilité.

Définition [2][3] On dit que (P_h) est une approximation "cohérente" ou totalement stable de (P) si pour $h < h_o$, l'opérateur E_h, de $\bigotimes_{i=o}^{i=m} F_{ih}$ dans U_h, qui, au second membre f_{oh} et aux conditions aux limites f_{ih} $(i=1,\ldots m)$, associe la solution y_h de (P_h), est continu, et cela uniformément en h

Ce qui s'explicite de la manière suivante :

Pour tout $\varepsilon > 0$, il existe $\delta(\varepsilon)$ indépendant de h tel que pour $\|f_{ih} - f'_{ih}\|_{Fih} < \delta$ (i=0,.. m) on ait $\|y_h - y'_h\|_{U_h} < \varepsilon$, y_h et y'_h étant les solutions des problèmes (P_h) et (P'_h) associés aux fonctions f_{ih} et f'_{ih}.

On définit aussi des stabilités partielles par rapport au second membre ou par rapport à certaines conditions aux limites, selon que l'on assure seulement la continuité par rapport à f_{oh} ou par rapport à certains f_{ih} (i>1).

Remarque Si l'opérateur E, qui au second membre f_o et aux conditions aux limites f_i(i = 1,··m) associe la solution u n'est pas continu de $\bigotimes_{i=o}^{m} Fi$ dans U, alors le problème (P) est mal posé et il n'y a aucun espoir de trouver une approximation consistante qui soit stable ([4] p 59).

Mais d'un autre côté (P) peut être bien posé sans que (Ph) soit stable. C'est bien sûr cela qu'il faudra éviter.

II - 3.6. Relation entre la stabilité et la convergence

Si (P_h) est un problème "voisin" de (P) (II-3.4.) et uniformément bien conditionné par rapport aux f_{ih} (II-3.5.), on peut s'attendre à ce que la solution y_h de (P_h) soit voisine de la solution y de (P). C'est ce que confirme le :

Théorème [2] Si (P_h) est une approximation consistante et totalement stable de (P), alors pour y solution de (P), y_h converge vers y, c'est-à-dire $\|r_h(y) - y_h\|_{U_h}$ tend vers 0 lorsque h tend vers 0.

II - 3.7. Formules aux différences finies

Soit y une fonction d'une variable x, que nous

supposerons dérivable un nombre de fois suffisant dans un sens que nous allons voir immédiatement. On peut alors écrire la formule de Taylor :

$$y(x+h) = y(x) + h\frac{dy}{dx} + \frac{h^2}{2}\frac{d^2y}{dx^2} + \frac{h^3}{6}\frac{d^3y}{dx^3} + \cdots \qquad (61)$$

De même

$$y(x-k) = y(x) - k\frac{dy}{dx} + \frac{k^2}{2}\frac{d^2y}{dx^2} - \frac{k^3}{6}\frac{d^3y}{dx^3} + \cdots \qquad (62)$$

La formule est valable avec des $\frac{\partial^i y}{\partial x^i}$ si y est fonction d'une autre variable.
On considère trois points W, P et E (qui seront bien sûr des points de notre maillage), d'abscisses x - k, x et x + h.

II - 3.7.1. Approximations de la dérivée première

Par une simple réécriture de (61) on obtient la différence décentrée d'ordre 1.

$$\frac{dy(x)}{dx} = \frac{y(x(h) - y(x)}{h} + \frac{h}{2}\frac{d^2y}{dx^2}(x+\theta h) \quad (\text{avec } 0 \leqslant \theta < 1) \qquad (63)$$

On aurait une formule du même genre avec (62). Mais on obtient une bien meilleure précision en combinant (61) et (62) pour obtenir la différence centrée d'ordre 2.

$$\frac{dy(x)}{dx} = \frac{k(y(x+h)-y(2)}{h(h+k)} - \frac{h(y(x) - y(r-k))}{k(h+k)} + \qquad (64)$$

$$\frac{hk}{6}\frac{d^3y}{dx^3}(x_1) \quad \text{avec } x-k \leqslant x_1 \leqslant x+h$$

Mais il n'est pas toujours possible d'utiliser cette formule, par exemple quand E ou W est hors du domaine, ou quand la formule centrée rend le schéma instable. Mentionnons donc la différence décentrée d'ordre 2.

$$\frac{dy(x+h)}{dx} = \frac{2h+k}{h(h+k)}\,y(x+h) - \frac{h+k}{hk}\,y(x) + \frac{h}{k(h+k)}\,y(x-k) + \frac{1}{6}\,h(h+k)\,\frac{d^3y}{dx^3}(x_2) \text{ avec } x-k < x_2 < x+h \qquad (65)$$

II - 3.7.2. Approximations de la dérivée seconde

On utilise presque toujours la formule centrée d'ordre 1 obtenue en faisant la combinaison k x (61)−h x (62), qui donne :

$$\frac{d^2y}{dx^2}(x) = \frac{2}{h+k}\left[\frac{y(x+h)-y(x)}{h} - \frac{y(x)-y(x-k)}{k}\right] + \frac{h-k}{6}\,\frac{d^3y}{dx^3}(x_3) \text{ avec } x-k \leqslant x_3 \leqslant x+h \qquad (66)$$

La formule est d'ordre 2 si h = k (cas du pas constant)

Il peut arriver (on le verra au paragraphe 5) que l'on ait à calculer la dérivée seconde sur une frontière où la dérivée première est nulle.

On a encore une formule décentrée d'ordre 2 dans ce cas.

$$\frac{d^2y}{dx^2}(x+h) = -\frac{2(h+k)}{kh^2}\left(y(x+h)-y(x)\right) + \frac{2h}{k(h+k)^2}\left(y(x+h)-y(x-k)\right) - \frac{h(h+k)}{24}\,\frac{d^4}{dx^4}(x_4) \text{ avec } x-h \leqslant x_4 \leqslant x+h \qquad (67)$$

II - 3.7.3. Schéma aux différences finies

On fabriquera un schéma en choisissant des formules que l'on vient de voir pour chacune des dérivées, en recherchant trois qualités souvent contradictoires : la stabilité, la précision et l'économie (ce dernier souci nous a fait rejeter les schémas avec plus de 3 points qui sont un peu plus précis, mais plus coûteux numériquement).

II - 3.8. Méthode de discrétisation complète et méthode conservative

II - 3.8.I. La méthode de discrétisation complète consiste à traiter les équations ponctuelles aux dérivées partielles du type

$$\bar{\nabla} . (F\bar{V}) = - \bar{\nabla} . j_F + W_F \quad (8)$$

en remplaçant en chaque point du maillage les dérivées par les différences finies.

II - 3.8.2. La méthode conservative consiste à traiter les équations (8) intégrées sur un volume $\mathcal{V}$. Dans notre cas, $\mathcal{V}$ sera un tore dont la section est un rectangle $\mathcal{R}$. Du fait de la symétrie de révolution,

$$\iiint_{\mathcal{V}} . dr dz d\theta = 2\pi \iint_{\mathcal{R}} . dr dz$$

Numériquement, il reste à calculer des dérivées premières et des intégrales. On calcule les dérivées premières par les méthodes aux différences finies, et les intégrales par une utilisation conjuguée de la formule des trapèzes et de la formule de la moyenne.

Cette méthode a un intérêt évident lorsque (8) est

la forme ponctuelle d'une équation de bilan (6). La méthode conservative retrouve alors la forme intégrale originelle. Le résidu a alors une signification physique certaine.

Cet intérêt est peut-être moins évident pour ψ et ω, dont l'équation de bilan n'est pas directement issue des lois physiques.

II - 3.8.3. Comparaison entre les deux types de méthodes

Dans le cas d'équations linéaires à coefficients constants avec des conditions limites de Dirichlet, les méthodes conservatives sont des cas particuliers de méthodes de discrétisation complète.

Dans les cas plus compliqués, l'évaluation des erreurs de troncature devient plus incertaine pour les méthodes de discrétisation complète. La méthode conservatrice semble alors préférable, en particulier pour l'approximation des conditions aux limites.

II - 3.9. Matrices des problèmes aux dérivées partielles discrétisés

II - 3.9.1. Formulation matricielle

Il est commode d'écrire le problème (P_h) : $L_{ih} Y_h = f_{ih}$ $(i=0..m)$ sous une forme matricielle $L_h y_h = f_h$, où L_h, y_h et f_h sont respectivement une matrice carrée et deux vecteurs dont la dimension est égale au nombre de noeuds du maillage. L_h regroupe alors les équations intérieures et sur les frontières ; f_h regroupe le second membre et les conditions aux limites. La non linéarité du problème intervient dans le fait que L_h et f_h dépendent de y_h.

f_h se trouve maintenant dans le même espace vectoriel U_h que y_h, qui est muni de la norme $\| \ \|_{U_h}$ compatible avec la norme $\| \ \|_U$.

(Ph) est une approximation totalement stable de (P) si l'opérateur de U_h dans U_h, qui à f_h associe y_h, est uniformément continu par rapport à h, c'est-à-dire si

$\| y_h - y'_h \|_{U_h} \leq N \| f_h - f'_h \|_{U_h}$ avec N indépendant de h.

Dans le cas où P_h est linéaire, on a $N = S_h(L_h^{-1})$ où S_h est la norme matricielle engendrée par $\| \ \|_{U_h}$, qui est définie par:

$$S_h(A) = \underset{x \in U_h}{\text{Max}} \frac{\|Ax\|_{U_h}}{\|x\|_{U_h}} \qquad [5]$$

Donc, pour que (Ph) soit stable, il faut et il suffit que $Sh(L_h^{-1})$ soit bornée indépendamment de h.

Cette majoration est un problème difficile. On verra au II-4 quelques hypothèses qui permettent de l'obtenir. Ma au II-5, on ne sait rien démontrer de mieux que l'inversibilité de L_h.

II - 3.9.2. Inversibilité des matrices de problèmes a dérivées partielles

Mettons en place quelques notions sur les matrices que nous allons utiliser.

Définition 1 Une matrice carrée D = (dij) est dite diagonal si tous ses termes hors diagonaux sont nuls. Autrement dit, $d_{ij} = 0$ pour $i \neq j$.

Définition 2 Une matrice carrée TD = (tdij) est dite tri-diagonale si tous ses termes sont nuls en dehors de la diagonale, la sur-diagonale et la sous-diagonale. Autrement dit $td_{ij} = 0$ pour $|i-j| > 1$

On notera

$$D = \begin{pmatrix} d_1 & & \\ & \ddots & \\ & & d_p \end{pmatrix}, \quad TD = \begin{pmatrix} b_1 & c_1 & & & \\ a_2 & b_2 & c_2 & & \\ & & & & c_{p-1} \\ & & & a_p & b_p \end{pmatrix}$$

Définition 3 Une matrice TDB = (tdb_{ij}) d'ordre pq est dite tridiagonale par blocs d'ordre p si tdb_{ij} est nul, sauf éventuellement pour

$$\left| i - j \right| \leq 1 \text{ et pour } \left| i - j \right| = p$$

On notera

$$TDB = \begin{pmatrix} B_1 & C_1 & & & \\ A_2 & B_2 & C_2 & & \\ & & & C_{q-1} & \\ & & A_q & B_q & \end{pmatrix}$$

où C_i et A_i sont des matrices diagonales, Bi tridiagonale.

Il est bien connu que dans un domaine rectangulaire, avec une numérotation convenable des inconnues, les matrices des problèmes aux dérivées partielles discrétisés avec les formules (63) à (67) sont tridiagonales par blocs.

Si le problème est parabolique (II-4), les blocs au-dessus de la diagonale seront nuls et on pourra résoudre successivement q systèmes de p équations à p inconnues par une méthode directe (algorithme de Thomas).

Si le problème est elliptique (II-5), la situation sera beaucoup moins simple et on devra recourir à des méthodes itératives.

Nous allons maintenant définir quelques propriétés importantes [6] que ces matrices devront posséder. A = (a_{ij}) désignera par la suite une matrice carrée d'ordre p.

Définition 4 A est dite irréductible si, pour tous i et j compris entre 1 et p, on a ou bien $a_{ij} \neq 0$, ou bien il existe

une suite $k_1, k_2, \ldots k_q$ d'entiers compris entre 1 et p, avec $k_1 = i$ et $k_q = j$, tels que $a_{k_i\ k_{i+1}} \neq 0$ pour $i = 1, \ldots, q-1$.

Propriété Pour que A soit irréductible, il faut et il suffit qu'il n'existe aucune matrice de permutation P telle que PAP^{-1} soit triangulaire par blocs, c'est-à-dire

$$PAP^{-1} = \begin{pmatrix} A_1 & 0 \\ A_2 & A_3 \end{pmatrix}$$

avec 0 matrice nulle, A_1 et A_3 matrices carrées.

Remarque fondamentale

Toute matrice A tridiagonale telle que $a_{ij} \neq 0$ quels que soient i et j vérifiant $|i - j| \leq 1$ est irréductible.

En effet, il existe un cheminement d'éléments tous non nuls entre les lignes i et j.

Supposons, pour fixer les idées $i < j$. Alors le cheminement défini par $(a_{i\,i+1}\ a_{i+1\ i+2} \cdots a_{j-2\ j-1}, a_{j-1\ j})$ est composé de termes tous non nuls. Donc la matrice est irréductible.

Définition 5 A est dite fortement diagonalement dominante (F.d.d) si pour $i = 1, \ldots p$, $|a_{ii}| \geq \sum_{j \neq i} |a_{ij}|$

Définition 6 A est dite faiblement diagonalement dominante (f.d.d.) si pour $i = 1, \ldots p$, $|a_{ii}| \geq \sum_{j \neq i} |a_{ij}|$ avec inégalité stricte pour au moins un i.

Théorème [6] Si A est fortement diagonalement dominante (F.d.d.) ou irréductible et faiblement diagonalement dominante (i.f.d.d), A est inversible. Nous verrons au paragraphe 5 que A est même beaucoup mieux qu'inversible.

Remarque : Le théorème est encore vrai si A est réductible et semblable à une matrice dont les blocs diagonaux sont eux-mêmes i.f.d.d.

II - 3.9.4. Principe du maximum pour certains systèmes à matrice tridiagonale

Soit à résoudre le système linéaire

$$(S)\quad \begin{cases} y_1 = f_1 \\ b_i\, y_{i-1} + (b_i + c_i + d_i) y_i - C_i y_{i+1} = f_i \\ \text{pour } i = 2, \ldots m-1 \\ y_m = f_m \end{cases}$$

On suppose que pour $1 < i < m$, $b_i > 0$, $C_i > 0$, $d_i > 0$ et on pose $d_1 = d_m = 1$.

La matrice A du système (S) est F.d.d. Donc le système a une solution.

Nous allons nous servir d'un résultat qui est montré dans [2] dans le cas où d_i est constant.

Théorème La solution y du système (S) vérifie l'inégalité :
$\text{Max } |y_i| < \text{Max } \left|\frac{f_i}{d_i}\right|$ (i)

Démonstration : Soit k tel que $|y_k| = \text{Max } |y_i|$
Si k est égal à 1 ou m, (i) est évidemment vérifiée sinon, le fait que $|y_k| = \text{Max}|y_i|$ implique l'inégalité :

$$|f_k| = |-b_k y_{k-1} + (b_k + C_k + d_k) y_k - C_k y_{k-1}| \geq$$
$$|-b_k y_k + (b_k + C_k + d_k) y_k - C_k y_k| = |d_k y_k|$$

Donc $|y_k| \leq \left|\frac{f_k}{d_k}\right|$ et à fortiori $|y_k| \leq \text{Max} \left|\frac{f_i}{d_i}\right|$, ce qui démontre (i).

Cas particulier Si $d_i = 1$ pour $i = 1 \ldots m$, alors $\frac{\text{Max} |(A^{-1} f)_i|}{\text{Max}|f_i|} \leq 1$ Donc la norme du Max S_∞ (A^{-1}) de la matrice inverse de la matrice du système est inférieure ou égale à 1.

II - 4. RESOLUTION DU PROBLEME PARABOLIQUE

La mise du problème sous forme parabolique repose sur l'hypothèse de la couche limite qui s'énonce : "pour les fonctions y = v,T,Yi du problème, $\frac{\partial^2 y}{\partial z^2} << \frac{\partial^2 y}{\partial r^2}$. En outre, la pression est indépendante de r, donc $\frac{\partial P}{\partial r} = 0$

Dans les calculs présentés au paragraphe 5, nous avons vérifié à posteriori que cette hypothèse est valable dans la gamme des nombres de Reynolds et Grashof de notre problème.

Dans l'intérieur du domaine de calcul, notre problème est donc un problème d'évolution dans le sens des z croissants On peut alors adopter une technique de calcul par couches successives, chaque variable ne dépendant que de ses valeurs aux points fixés en amont.

Mais sur la frontière du domaine pour $r = r_1$, on a la condition $\frac{d^2 T_1}{dz^2} = a \frac{\partial T}{\partial r}$ avec T fixé à l'aval de l'écoulement. Il est donc impossible de calculer la température frontière en même temps que la température intérieure (une méthode de tir ôterait tout avantage à cette forme parabolique). On devra donc la supposer connue par un calcul préliminaire (voir paragraphe 5).

Rappelons les équations à résoudre :

$$\rho u \frac{\partial v}{\partial r} + \rho v \frac{\partial v}{\partial z} = - \frac{dP}{dz} + \frac{1}{Re}\left[\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}(\mu r \frac{\partial v}{\partial r})\right] - \frac{\rho}{Fr} \qquad (41)$$

$$\frac{\partial}{\partial r}(\rho r u) + \frac{\partial}{\partial z}(\rho r v) = 0 \qquad (42)$$

$$\rho u \frac{\partial T}{\partial r} + \rho v \frac{\partial T}{\partial z} = \frac{1}{RePr}\left[\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\cdot(\lambda r \frac{\partial T}{\partial r})\right] \qquad (43)$$

$$\rho u \frac{\partial Yi}{\partial r} + \rho v \frac{\partial Yi}{\partial z} = \frac{1}{ReSc}\left[\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}(\rho Dir \frac{\partial Yi}{\partial r})\right] \quad i=1,\cdots n-1 \qquad (44)$$

Les inconnues principales sont les fonctions v, T et Yi qui sont supposées connues à l'entrée du réacteur (conditions

initiales) et sur les parois (conditions aux limites). Les inconnues secondaires sont v et $\frac{dP}{dz}$. ρ, μ, λ et D_i sont des fonctions de T et des Y_i (voir chapitre I).

II - 4.1. Généralités sur la méthode

Notre méthode s'apparente à celle qu'ont utilisée Bodoïa-Osterle [7] et Vernier [8].

Nous découplons toutes les équations, c'est-à-dire que dans (41) nous supposons u, T et les Yi connus, donc ρ et μ, dans (42) on suppose v connu, dans (43) on suppose u, v et les Yi connus ; dans (44) on suppose u, v et T connus. Il est alors possible de calculer chaque fonction séparément.

Le seul couplage que nous ne pouvons pas éliminer est celui de v et du paramètre $\frac{dP}{dz}$. Nous verrons comment on procède au II - 4.2.

La résolution de ce problème parabolique se fait par couches successives, suivant la direction Oz. Les couches 0 à j-1 ayant été calculées, on se fixe une formule de discrétisation pour la dérivée $\frac{\partial}{\partial z}$. On a alors sur la couche j un problème différentiel à résoudre, que nous discrétisons à son tour.

II - 4.2. Calcul du gradient de pression

Il se calcule en fait en même temps que la vitesse axiale V. Considérons en effet l'équation (41) discrétisée par une méthode quelconque. Soit p le nombre de points du maillage par couche. Sur la couche j on a pour l'équation (41) p-1 inconnues : v_2^j, ... v_{p-1}^j et le gradient de pression $(\frac{dP}{dz})^j$. La discrétisation de (41) fournit p-2 équations. On trouvera la p-ième en intégrant (42) entre r_1 et r_2.

$$\int_{r_1}^{r_2} \frac{\partial}{\partial z}(\rho r v)\,dr + \int_{r_1}^{r_2} \frac{\partial}{\partial r}(\rho r u)\,dr = 0$$

équivaut en effet à :

$$\frac{d}{dz}\int_{r_1}^{r_2}(\rho rv)dr + \Big[\rho ru\Big]_{r_2}^{r_1} = \frac{d}{dz}\int_{r_2}^{r_1}\rho rv dr - \rho_1 r_1 u_1 = 0 \quad (68)$$

car $u_2 = 0$. Cette dernière équation exprime que la diminution du débit massique est égale à la masse déposée à la paroi du substrat.

On calculera l'intégrale par la formule des trapèzes, ce qui donne :

$$\frac{1}{p-2}\sum_{i=2}^{p-1}(\rho_i r_i v_i)^j = \frac{1}{p-2}\sum_{i=2}^{p-1}(\rho_i r_i v_i)^{j-1} - (\rho_1 r_1 v_1)^{j-1/2} \quad (69)$$

si le pas dans le sens Or est constant.

II - 4.3. Calcul de la vitesse radiale u

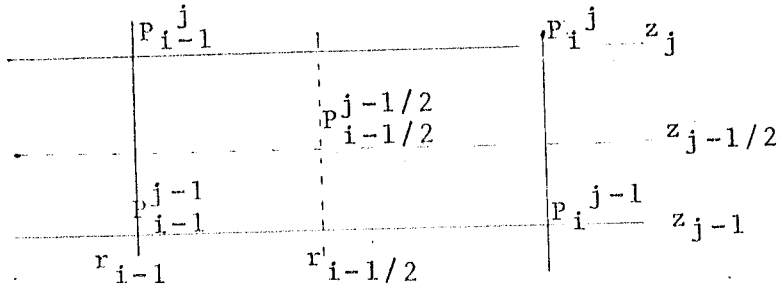
Si v et ρ sont connus, v vérifiant (68), l'équation (42):

$$\frac{\partial}{\partial r}(\rho ru) + \frac{\partial}{\partial z}(\rho rv) = 0$$

est une simple équation différentielle à coefficients variables mais avec deux conditions aux limites : $u = u_1$ pour $r = r_1$ et $u = 0$ pour $r = r_2$.

Il y a donc une condition de compatibilité à remplir. Mais cette condition, c'est précisément l'équation (68), qui est bien vérifiée par v. Donc notre problème a une solution.

Nous utilisons un schéma conservatif à 4 points



Ce schéma consiste à écrire la conservation de la masse sur le tore dont la section est le rectangle $P_{i-1}^{j-1}\ P_{i-1}^{j}\ P_{i}^{j}\ P_{i}^{j-1}$ pour calculer U_i^j à partir de U_i^{j-1}, V étant connu.

$$\int_{ri-1}^{ri}\int_{zj-1}^{zj} \frac{\partial(\rho ru)}{\partial r} + \frac{\partial(\rho rv)}{\partial z}\, drdz = 0$$

$$\int_{zj-1}^{zj} \Big[\rho ru\Big]_{ri-1}^{ri} dz + \int_{ri-1}^{ri} \Big[\rho rv\Big]_{zj-1}^{zj} dr = 0$$

Nous calculons les deux intégrales par la formule des trapèzes, ce qui donne :

$$\Big[(\rho ru)^j + (\rho ru)^{j-1}\Big]_{ri-1}^{ri} + \Big[(\rho rv)_i + (\rho rv)_{i-1}\Big]_{zj-1}^{zj} = 0$$

Cela revient à discrétiser complètement l'équation au point $P_{i-1/2}^{j-1/2}$ avec les différences centrées du type (64). L'approximation est donc d'ordre 2.

Tout se passe comme si l'on calculait $u^{j-1/2}$ par la méthode de la tangente améliorée, et que l'on calculait ensuite u^j par la formule d'extrapolation $u^j = 2u^{j-1/2} - u^{j-1}$

Soit une condition initiale $u = u_o$ pour $r = r_1$. La solution du problème discret est de la forme $u(r) = u_o + g(r,v)$, g étant indépendant de u_o. L'approximation est donc stable par rapport aux conditions aux limites.

En pratique, on fait deux calculs : l'un en démarrant de $r = r_1$, l'autre en démarrant de $r = r_2$, et on fait la moyenne des résultats aux points intérieurs.

La condition de compatibilité se retrouve dans la condition $u_{r1} = u_1, u_{r2} = 0$. Elle est vérifiée aux erreurs d'arrondi près puisque v vérifie (69). [9]

II - 4.4. Calcul des variables principales v, T et Yi

Nous avons à résoudre 3 équations de type parabolique par rapport à z.

$$\rho u \frac{\partial y}{\partial r} + \rho v \frac{\partial y}{\partial z} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(ar \frac{\partial y}{\partial r}) + f_o \qquad (70)$$

où a est fonction de T et des Yi et f_o est nul, sauf pour l'équation (41). On a vu au II-4.2. qu'alors $f_o = \frac{dP}{dz} - \frac{\rho}{Fr}$ se calcule en même temps que V. La présence des coefficients variables, en particulier a et v, nous impose deux nécessités :

- Nécessité d'un schéma inconditionnellement stable, donc d'un schéma implicite (le seul schéma explicite inconditionnellement stable est celui de Dufort-Frankel[4] qui nous a donné des résultats numériques médiocres en précision [9]
- Nécessité d'itérer puisque les coefficients dépendent de la solution du problème. Ceci nous a conduits à essayer d'extrapoler les coefficients pour améliorer la précision de la première itération. D'où l'intérêt du schéma II - 4.4.3.

II - 4.4.I. Stabilité des schémas aux différences dans les problèmes d'évolution avec conditions aux limites.

Précisons maintenant pour les problèmes paraboliques les notations du II-3. Le problème (P) s'écrit $L_i y = f_i$ pour i = O, e, 1, 2. Les indices O, e, 1, 2, caractérisent respectivement l'intérieur du domaine, l'entrée, la paroi intérieure et la paroi extérieure.
Lo est défini par :

$$Lo = \rho u \frac{\partial}{\partial r} + \rho v \frac{\partial}{\partial z} - \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(ar \frac{\partial}{\partial r})$$

Li est l'opérateur identité pour i = e,1,2, puisque l'on a des conditions de Dirichlet.

f_o est le second membre, f_e est la condition initiale, f_1 et f_2 sont les conditions aux limites.

On suppose que l'on a fait un maillage régulier de pas $\Delta r = \frac{r2-r1}{p-1}$ et $\Delta z = \frac{z2}{n-1}$. Tout ce que nous allons voir se transpose aisément dans le cas du maillage variable.

Le problème parabolique (P_h) permet une intégration par couches successives. A partir de la condition initiale $y_h(\ ,o) = y^\circ = f_e = f^\circ$ (vecteur de dimension p), on calcule successivement $y^1 = y_h(.,\Delta z)$, y^2, $y^n = y_h(.,z_2)$ en résolvant une série de problèmes qui s'écrivent matriciellement

$$M_j\ y^j - N_j\ y^{j-1} = f^j \qquad (71)$$

Mj et Nj sont des matrices carrées d'ordre p, Mj étant toujours inversible.
Si M_j et N_j sont indépendantes de y^j, le problème (71) est linéaire. Cela se produit pour les fonctions T et Y_i dans le cas très important de la convection forcée (chapitre 3) où u et w sont indépendantes de T et Y_i. C'est l'hypothèse que nous ferons pour étudier les conditions de stabilité.
Sinon, on ne sait pas démontrer que ces conditions sont valables. Mais nous avons constaté qu'elles le sont en pratique.

Condition nécessaire et suffisante de stabilité

Si Mj est inversible, alors (71) équivaut à :

$$y^j = R_{hj} y^{j-1} + \rho^j \qquad (72)$$

avec $R_{hj} = M_j^{-1} N_j$ et $\rho^j = M_j^{-1} f^j$

On peut donc exprimer y^j en fonction de $y^\circ = f^\circ = f_e$ par la formule $y^j = \sum_{i=o}^{i=j} E_i \rho^{j-i}$ (73)

avec $E_o = I$, $E_i = R_{hj} \times R_{hj-1} \times \ldots \times R_{hj-i+1}$ pour $i = 1,\ldots j$

Posons $R_h^j = Ej = R_{hj} \times R_{hj-1} \times \ldots\ldots R_{h1}$

Munissons l'espace vectoriel R^p d'une norme $\| \quad \|_p$, à laquelle est associée la norme matricielle Sp.
Nous transcrivons dans notre formulation le théorème de stabilité qui a été démontré par Godunov et Ryabenkii[2] avec des hypothèses supplémentaires que nous n'écrivons pas car elles découlent de la formulation (72) que nous avons adoptée. (ces conditions portent sur le rapport des normes de f_e et des f_{ih} pour $i \neq e$).

Théorème S'il existe une constante L positive telle que $\| \rho^j \|_p \leq L \| f^j \|_p$ (H), alors le problème (Ph) est une approximation totalement stable de (P) si et, seulement s'il existe une constante positive K telle que $Sp(R_h^j) \leq K$

Le second membre et les conditions aux limites interviennent par l'hypothèse (H). Cette hypothèse est automatiquement vérifiée dans deux cas.

Si le problème est homogène, c'est-à-dire s'il n'y a pas de second membre, alors $\rho_1^j = f_1^j$, $\rho_p^j = f_p^j$ et $\rho_i^j = 0$ pour $i \neq 1$ et $i \neq p$.
Donc (H) est vérifiée avec L = 1.

Si le schéma est explicite, alors la matrice Mj de la formule (71), telle que $\rho^j = M^{-1} f^j$ est une matrice scalaire LI, avec L scalaire positif. Donc (H) est encore vérifiée.

Dans les autres cas, on essaiera de majorer $Sp(Mj^{-1})$ en utilisant par exemple le principe du maximum.

Si on ne fait plus l'hypothèse (H), on retrouve la définition classique [4] de la stabilité par rapport aux conditions initiales.

Définition: (P_h) est dit stable par rapport aux conditions initiales s'il existe une constante positive K telle que $Sp(R_h^j) \leq K$. C'est cette stabilité qui est le plus fréquemment étudiée.

Dans la réalité, la condition $Sp(R_h^j) \leq K$ est souvent difficile à démontrer. Nous ne l'avons établie dans les schémas que nous avons effectivement utilisés qu'en faisant une hypothèse draconienne. Il est donc intéressant de trouver une condition nécessaire, qui constituera une indication de stabilité.

Condition nécessaire de stabilité [2] pour que $Sp(R_h^j) \leq K$, il faut que l'ensemble des points d'accumulation des valeurs propres des matrices R_{hj} soit situé dans le cercle unité $|\lambda| \leq 1$.

Cela résulte du fait que toutes les normes matricielles majorent le rayon spectral [5].

Nous allons voir au II-4.4.2. et au II.4.4.3. que les schémas implicites que nous utilisons vérifient $|\lambda| < 1$ pour toute valeur propre λ d'une matrice R_{hj}, si l'on fait l'hypothèse naturelle $v > o$. Nous pensons que cette hypothèse est suffisante, mais nous ne sommes pas parvenus à le démontrer. Nous avons donc dû utiliser une autre hypothèse beaucoup plus forte pour démontrer la stabilité. On verra au II - 4.4.4. que l'hypothèse $v > 0$ assure la stabilité pour le schéma de Laasonen , ce qui nous paraît un résultat intéressant sur le plan théorique.

Influence des dérivées premières sur la stabilité

Comme cela est montré dans Morton-Richtmyer [4] et comme nous l'avons démontré pour notre problème [9] à partir d'une analyse locale, les termes en $\frac{\partial}{\partial r}$ n'ont pas d'influence sur la stabilité, pourvu que $\frac{\partial y}{\partial z}$ reste borné et que le coefficient de $\frac{\partial}{\partial r}$ soit une fonction continue. Nous étudions l'équation (70) qui peut s'écrire

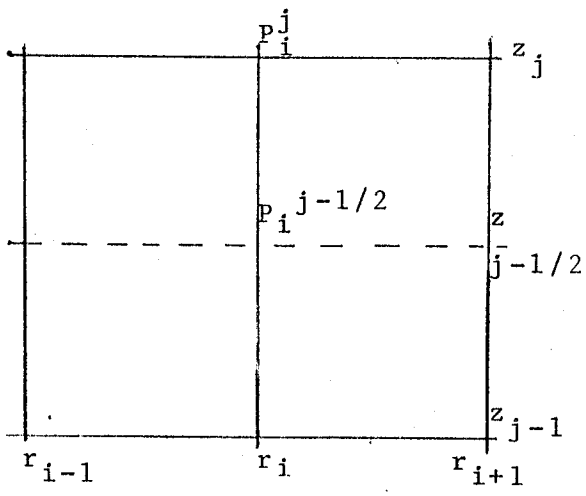
$$v \frac{\partial y}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial r}(a \frac{\partial y}{\partial r}) + b + (\frac{a}{r} - u) \frac{\partial y}{\partial r}. \qquad (70)$$

r étant minoré puisque l'on est en écoulement annulaire, a et u étant continus et bornés, la stabilité d'un schéma de discrétisation de (70) sera équivalente à la stabilité d'un schéma de discrétisation de l'équation

$$v \frac{\partial y}{\partial r} = \frac{\partial}{\partial r}(a \frac{\partial y}{\partial r}) + b \qquad (74)$$

Nous ferons donc l'étude de la stabilité pour cette dernière équation. Le rôle du second membre et des conditions aux limites à travers l'hypothèse (H) n'en sera pas modifié.

II - 4.4.2. Schéma de Crank-Nicholson (Figure 7)



C'est le schéma le plus classique. D'un point de vue conservatif, nous dirons qu'il consiste à intégrer l'équation (70) sur le rectangle délimité par les droites $r = r_{i-1}$, $r = r_{i+1}$, $z = z_{j-1}$, $z = z_j$. D'un point de vue de pure discrétisation, nous dirons qu'il consiste à écrire les différences centrées de type (64) et (66) au point $P_i^{j-1/2}$, centre du rectangle. C'est donc un schéma d'ordre 2. Il s'écrit :

$$(U_i^{j-1/2} - \frac{a_i^{j-1/2}}{ri}) \frac{y^j_{i+1} - y^j_{i-1} + y^{j-1}_{i+1} - y^{j-1}_{i-1}}{4\,\Delta r} + V_i^{j-1/2} \left(\frac{y^j_i - y^{j-1}_i}{\Delta z}\right) =$$

$$\frac{1}{2\,\Delta r^2}\left(a^{j-1/2}_{i+1/2}\left(y^j_{i+1} - y^j_i + y^{j-1}_{i+1} - y^{j-1}_i\right) - a^{j-1/2}_{i-1/2}\left(y^j_i - y^j_{i-1} + y^{j-1}_i - y^{j-1}_{i-1}\right)\right)$$

$$+ b_i^{j-1/2} \qquad (75)$$

Deux remarques s'imposent :

Remarque 1 Le schéma est implicite puisque y^j_{i-1} et y^j_{i+1} apparaissent en même temps que y^j_i. Il faudra donc résoudre un système tridiagonal pour calculer y^j.

Remarque 2 Les coefficients $a^{j-1/2}$, $u^{j-1/2}$, $v^{j-1/2}$ sont à priori inconnus. Il faudra donc itérer en les remplaçant au premier pas par a^{j-1}, u^{j-1}, v^{j-1}.
Nous avons essayé d'extrapoler les coefficients par la formule $a_i^{j-1/2} = \frac{3}{2} a_i^{j-1} - \frac{1}{2} a_i^{j-2}$. Cette formule s'est révélée instable.

Condition nécessaire de stabilité du schéma de Crank-Nicholson

$$v \frac{\partial y}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial r} (a \frac{\partial y}{\partial r}) + b \qquad (74)$$

Posons: $d_i = \Delta z / 2 v_i^{j-1/2} \Delta r^2$, $a_i = a_{i-1/2}^{j-1/2} d_i$, $b_i = a_{i+1/2}^{j-1/2} d_i$

pour i=2 à p-1, ce qui suppose $v_i \neq 0$.

Le schéma s'écrit alors matriciellement:

$(I+C)y^j = (\tilde{I}-C)y^{j-1} + f^j$, avec I matrice unité,

$\tilde{I}$=I sauf pour la 1ère et la dernière ligne qui sont nulles.

et $C = \begin{pmatrix} 0 & \cdots & \cdots & \cdots & 0 \\ -a_2 & a_2+b_2 & -b_2 & 0 & \\ 0 & -a_3 & -a_3+b_3 & -b_3 & \\ & & & & \\ & & & & \\ & & 0 & -a_{p-1} & a_{p-1}+b_{p-1} & -b_{p-1} & 0 \\ 0 & & & & & & 0 \end{pmatrix}$

Si v>0, les a_i et b_i sont positifs. C est f.d.d. et I+C est F.d.d., donc inversible. Le schéma peut alors s'écrire sous la forme: $y^j = R_{hj}\, y^{j-1} + \rho^j$ (72),

avec: $R_{hj} = (I+C)^{-1} (\tilde{I}-C)$ et $\rho^j = (I+C)^{-1} f^j$

Nous allons montrer que pour $v > 0$, le rayon spectral de R_{hj} est strictement inférieur à 1

Soit λ une valeur propre de R_{hj} et soit x un vecteur propre associé.

$$R_{hj}x = \lambda x \Longleftrightarrow ((I+C)^{-1}(\tilde{I}-C) - \lambda I)x = 0 \Leftrightarrow (\lambda(I+C) - (\tilde{I}-C)x) = 0$$

Donc, si λ est valeur propre, $A(\lambda) = \lambda(I+C) - (\tilde{I}-C)$ est singulière. Il nous suffit donc de montrer que pour $|\lambda| \geq 1$, $A(\lambda)$ est non singulière.

Si $\lambda = -1$, $A(\lambda) = -I - \tilde{I}$ est régulière.

Si $\lambda \neq -1$, $\frac{1}{\lambda+1} A(\lambda) = C + \frac{\lambda(I-\tilde{I})}{\lambda+1} + \frac{\lambda-1}{\lambda+1} I$

C étant f.d.d. à termes diagonaux positifs, pour montrer que $\frac{1}{\lambda+1} A(\lambda)$ est i.f.d.d., il suffit de montrer que la partie réelle de $\frac{\lambda-1}{\lambda+1}$ est positive ou nulle.

Si $\lambda = x + iy$, $\frac{\lambda-1}{\lambda+1} = \frac{x-1+iy}{x+1+iy} = \frac{x^2+y^2-1-iy}{(x+1)^2+y^2}$

Donc si $|\lambda| \geq +1$, $x^2 + y^2 - 1 \geq 0$
Donc $A(\lambda)$ est i.f.d.d. Par conséquent $A(\lambda)$ est régulière.

Nous avons donc montré que la condition nécessaire de stabilité est satisfaite pour ce schéma si $v > 0$

Condition suffisante de stabilité

Nous allons maintenant utiliser le théorème de Godunov et Ryabenkii. Il faut tout d'abord montrer que l'hypothèse (H) est vérifiée. La norme utilisée est la norme du Max.

$(I+C)\rho^j = f^j$ Cette égalité se détaille en :

$$\rho_1^j = f_1^j = f_{1h}$$

$$\rho_p^j = {}_p^j = f_{2h}$$

$$-a_i \rho^j_{i-1} + (a_i + b_i + 1)\, \rho^j_i - b_i\, \rho^j_{in} = f^j_i \qquad \text{pour } i = 2,..p-1$$

Rappelons que $a_i > 0$ et $b_i > 0$ pour $i = 2,\ldots p-1$ si $v > 0$

Il faut maintenant préciser f^j_i à partir de la fonction y dans l'équation $v \frac{\partial y}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial r}(a \frac{\partial y}{\partial r}) + b$ (74)

Si y est la température T ou une fraction massique Y_k, l'équation (74) est homogène car b = 0. On a donc toujours $f^j_i = \rho^j_i$ et par conséquent l'hypothèse (H) est vérifiée.

Si y est la vitesse axiale v, $f_{1h} = f_{2h} = 0$ puisque v est nul aux parois. D'après le principe du maximum (II-3.9.4)

$$\text{Max} \left| \rho^j_i \right| \leqslant \max_{i=2..p-1} \left| f^j_i \right|$$

De (41) et (75), on tire

$$f^j_i = \left(- \frac{dP}{dz} + \rho/Fr \right) \Delta z / v^{j-1/2}_i$$

La quantité $- \frac{dP}{dz} + \rho/Fr$, qui représente une grandeur physique dans un domaine borné, est uniformément bornée.

<u>Donc si $\frac{\Delta z}{v_i}$ est uniformément borné, la condition (H) est vérifiée</u>.

Que signifie cette hypothèse ? Pratiquement, c'est une hypothèse sur le rapport des pas Δr et Δz.

Sans prétendre rien démontrer, nous essayons d'éclaircir la signification de cette hypothèse. On suppose que $v > 0$ et $v_1 = v_p = 0$. <u>Si v est strictement concave</u>, alors $\min_{i=2..p-1} (V_i)$ est égal à v_2 ou v_{p-1}. Supposons par exemple que c'est v_2

Alors $\frac{v_2}{\Delta r} = \frac{v_2 - v_1}{\Delta r}$ est l'approximation de la dérivée de v à la paroi. Donc si $\frac{\partial v}{\partial r}$ est uniformément minoré par une

quantité non nulle aux parois et si $\frac{\Delta r}{\Delta z}$ est borné, $\frac{\Delta z}{v}$ est uniformément borné et la condition (i) est vérifiée.

En pratique, cette hypothèse est toujours vérifiée lorsque $v > 0$, sauf dans le cas limite où le courant présente un noyau stationnaire près d'une paroi. Dans le cas du schéma de Crank-Nicholson, cette hypothèse est moins forte que celle que nous allons faire ensuite.

Il faut maintenant montrer que R_h^j est borné pour la norme du Max. Et pour cela, il suffit de montrer que

$S^\infty(R_{hj}) \leqslant 1$ avec $R_{hj} = (I+C)^{-1}(I-C)$.
D'après le principe du maximum (II-3-9-4), $S^\infty(I+C)^{-1} \leqslant 1$.
Il n'y a plus qu'à faire en sorte que $S^\infty(\tilde{I}-C) < 1$.
La première et la dernière ligne de $\tilde{I}-C$ sont nulles.
$C_{ii-1} = -a_i$, $C_{ii} = a_i+b_i$, $C_{ii+1} = -b_i$ pour i=2 à p-1.
Les a_i et b_i étant positifs, pour que $S^\infty(\tilde{I}-C) \leqslant 1$, il faut que Max $(a_i+b_i) \leqslant 1$, ce qui assure:

$$|1-C_{ii}| + |C_{ii-1}| + |C_{ii+1}| = 1$$

Ceci se détaille en $\text{Max}\left(\frac{a_i^j \Delta z}{v_i^j \Delta r^2}\right) < 1$

Donc si $\text{Max}\ \frac{a_i^j}{v_i^j} < \frac{\Delta r^2}{\Delta z}$, <u>le schéma de Crank-Nicholson est totalement stable</u>.

Notons que cette hypothèse est inacceptable dans la pratique puisque v n'est pas minoré.

II - 4.4.3. <u>Schéma en T à trois niveaux</u>

Ce schéma n'est pas conservatif. Il consiste à discrétiser l'équation au point P_i^j en utilisant les différences centrées (64) et (66) pour $\frac{\partial}{\partial r}$ et $\frac{\partial 2}{\partial r^2}$, et la différence décentrée (65) pour $\frac{\partial}{\partial z}$. <u>Ce schéma est donc</u>

encore d'ordre 2. Il s'écrit :

$$(u_i^j - \frac{a_i^j}{r_i})_x \frac{y_{i+1}^i - y_{i-1}^j}{2\,\Delta r} + V_i^j \times \frac{3y_i^j - 4y_i^{j-1} + y_i^{j-2}}{2\,\Delta z} =$$

$$\frac{1}{\Delta_r^2}(a_{i+1/2}^j (y_{i+1}^j - y_i^j) - a_{i-1/2}^j (y_i^j - y_{i-1}^j)) + b_i^j \qquad (76)$$

Ce schéma, qui est un schéma décentré arrière, est implicite.

Remarque Pour calculer les coefficients a^j, u^j, v^j, nous avons utilisé la formule d'extrapolation $\psi^j = 2\psi^{j-1} - \psi^{j-2}$ qui est stable. L'erreur, qui est $\frac{\Delta z^2}{2} \frac{\partial^2 \psi}{\partial z^2}$, est bien sûr d'autant plus faible que $\frac{\partial^2 \psi}{\partial z^2}$ est faible, donc que l'hypothèse de la couche limite est mieux vérifiée. Or, précisément, c'est dans la couche limite que les coefficients varient le plus vite. Cette méthode est donc plus performante que la précédente.

Condition nécessaire de stabilité du schéma en T

Nous suivons le même principe qu'au II - 4.4.2., mais avec un artifice classique [4] qui nous ramène à un schéma à deux niveaux.

Posons $g_i^j = y_j^i$ pour $i = 1, ..p$ et $g_i^j = y_{i-p}^{j-1}$ pour $i = p+1, ..2p$

On définit C, I et $\tilde{I}$ comme au II-4-4-2.

L'équation (74) discrétisée par le schéma en T s'écrit matriciellement :

$$A^j g^j = A^{j-1} g^{j-1} + f^j, \text{ avec } A^j = \begin{pmatrix} C+3I & 0 \\ 0 & I \end{pmatrix}, \quad A^{j-1} = \begin{pmatrix} 4\tilde{I} & -\tilde{I} \\ I & 0 \end{pmatrix}$$

A^j est inversible comme dans le schéma de Crank-Nicholson. Il nous faut donc montrer que pour $\lambda > 1$, $\lambda A^{j+1} - A^j$ est régulière, et pour cela il suffit de montrer que son inverse existe.

Si la matrice $E = \lambda^2 - C+3I) - 4\lambda\tilde{I} + \tilde{I}$ est inversible, alors :

$$(\lambda A^{j+1} - A^j)^{-1} = \begin{pmatrix} \lambda E^{-1} & E^{-1}\tilde{I} \\ E^{-1} & E^{-1}(\lambda C + 3\lambda I - 4\hat{I}) \end{pmatrix}$$

Il suffit donc de montrer que E est inversible pour $v > 0$ et $|\lambda| \geq 1$. $E = \lambda^2 C + (3\lambda^2 - 4\lambda + 1)\tilde{I} + 3\lambda^2(I - \tilde{I})$. Donc $\frac{E}{\lambda^2} =$

$3(I - \hat{I}) + C + (\frac{1}{\lambda} - 1)(\frac{1}{\lambda} - 3)\tilde{I}$. Pour montrer que E est i.f.d.d., il suffit de montrer que la partie réelle de $(\frac{1}{\lambda} - 1)(\frac{1}{\lambda} - 3)$ est positive ou nulle. Soit $\frac{1}{\lambda} = x + iy$. Si $|\lambda| \geq 1$, $x^2 + y^2 \leq 1$

$(\frac{1}{\lambda} - 1)(\frac{1}{\lambda} - 3) = x^2 - y^2 - 4x + 3 + 2iy(x-2)$

$x^2 - y^2 - 4x + 3 \geq 2x^2 - 1 - 4x + 3 = 2(x-1)^2 \geq 0$.

Donc E est i.f.d.d. et par conséquent inversible.

<u>La condition nécessaire de stabilité est donc vérifiée pour le schéma en T si $v > 0$.</u>

Nous ne parlons pas de la condition suffisante, qui impose une hypothèse encore plus sévère que pour le schéma de Crank-Nicholson.

II - 4.4.4. <u>Schéma en T à deux niveaux ou schéma de LAASONEN</u>

Ce schéma diffère du précédent par l'approximation de la dérivée $\frac{\partial}{\partial z}$. On utilise la formule à deux points (63) au lieu de la formule à trois points (65).

Ce schéma n'est donc que d'ordre 1 en Δz. Nous lui avons donc préféré le précédent en pratique. Mais il est intéressant sur le plan théorique car nous pouvons démontrer sa stabilité totale avec la seule hypothèse $v > 0$.

Avec nos notations du II - 4.4.2., ce schéma peut s'écrire $(I+C)y^j = \hat{I}y^{j-1} + f^j$, soit $y^j = R_{hj}y^{j-1} + \rho^j$ (72) avec $R_{hj} = (I+C)^{-1}\tilde{I}$ et $\rho^j = (I+C)^{-1}f^j$.

On a vu au II-4-4-2 que si $v>0$, $S_\infty(I+C) < 1$, donc $S_\infty(R_{hj}) < 1$. Par conséquent <u>le schéma de Laasonen est stable par rapport aux conditions initiales</u>.

Si $\frac{\Delta z}{v}$ est uniformément borné (ce qui est vrai en pratique dès que v>0) le schéma est totalement stable (II-4-4-2).

Ce résultat nous paraît intéressant car il est global et tient compte des conditions aux limites. Nous n'avons trouvé dans la littérature que des démonstrations locales.

II- 4.5. Cas particulier des écoulements avec transfert de masse

Dès qu'il y a transfert de masse, les démonstrations de stabilité précédentes ne sont plus valables pour les fonctions Y_i autres que Y_3 puisque l'on a des conditions limites du type:

$$\frac{6}{M_3}\left(Y_3\, u - \frac{D_3}{ReSc}\left(\frac{\partial Y_3}{\partial r}\right)_\sigma\right) = \frac{k_i}{M_i}\left(Y_i\, u - \frac{D_i}{ReSc}\left(\frac{\partial Y_i}{\partial r}\right)_\sigma\right) \quad (57) \text{ pour } i=1,2.$$

En pratique, nous n'avonspas rencontré de difficultés numériques en adoptant le cycle d'itérations suivant:

1°) Calcul de T et w
2°) Calcul de Y_3 (M_oF_6) avec $(Y_3)_\sigma = 0$
3°) Calcul de Y_1 (H_2) ou Y_2 (HF) avec la condition limite (57)
4°) $Y_2 = 1 - Y_3 - Y_1$ ou $Y_1 = 1 - Y_3 - Y_2$
5°) Calcul de u avec $u_1 = u_\sigma = -\frac{1}{ReSc}\frac{M_s}{M_3} D_3 \left(\frac{\partial Y}{\partial r}\right)_\sigma$ (60)
6°) Test de convergence.

II- 5. RESOLUTION DU PROBLEME ELLIPTIQUE

Nous en sommes venus à la formulation elliptique principalement à cause de la difficulté que présente la conditions thermique à la paroi intérieure. Une seconde raison que nous avons vue au II-4-4 est l'impossibilité de résoudre le problème parabolique dès que la convection naturelle entraîne une recirculation. En effet, le problème est alors mal posé et tous les schémas aux différences consistants sont instables. Sur le plan pratique, cette difficulté n'en est pas vraiment une, car on cherche précisément à éviter la recirculation.

La formulation elliptique semble donc mieux adaptée à notre problème et le lecteur peut se demander à quoi se la méthode du II-4. Cette méthode devient utile pour le transfert de masse, pour lequel la formulation elliptique est inadaptée. Il faut en effet fixer des conditions de sortie. Or, la dérivée axiale $\frac{\partial \psi}{\partial z}$ est discontinue dans le cas du transfert de masse. En effet, si $\frac{\partial \psi}{\partial z} = 0$, $u = 0$. Or, s'il y a transfert de masse, u n'est pas nul la paroi (I-5.3.4.)

Pour supprimer cette discontinuité, il faudrait allonger beaucoup le domaine vers l'aval, ce qui devient coûteux et hasardeux quant à la précision des conditions aux limites. C'est pourquoi on se contentera de résoudre le problème aérothermique avec la formulation elliptique On calcule après le transfert de masse en utilisant la formulation parabolique.

On a donc dans ce paragraphe trois équations à résoudre :

$$u \frac{\partial T}{\partial r} + v \frac{\partial T}{\partial z} = \frac{1}{RePr}\left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(\lambda r \frac{\partial T}{\partial r}) + \frac{\partial}{\partial z}(\lambda \frac{\partial T}{\partial z})\right) \qquad (43)$$

$$\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{1}{\rho r} \frac{\partial \psi}{\partial r}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{1}{\rho r} \frac{\partial \psi}{\partial z}\right) = -\omega \qquad (48)$$

$$-\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{\omega}{r} \frac{\partial \psi}{\partial z}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{\omega}{r} \frac{\partial \psi}{\partial r}\right) = \frac{1}{Re}\left(\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(\mu r \omega)\right) + \frac{\partial^2}{\partial z^2}(\mu \omega)\right) + \frac{1}{Fr} \frac{\partial \rho}{\partial r} + S(\omega) \qquad (49)$$

$S(\omega)$ est défini par (50) au I-5.2.ψ et ω sont définis pa

$$\frac{\partial \psi}{\partial r} = \rho r v \quad (45) \qquad \frac{\partial \psi}{\partial z} = -\rho r u \quad (46) \qquad \omega = \frac{\partial u}{\partial z} - \frac{\partial v}{\partial r} \quad (48)$$

II - 5.I. Approximation du problème

II - 5.I.I. Principe général

Nous utilisons une méthode intégrale, peut-être pas très orthodoxe, qui consiste à traiter différemment l'équation (43) et les équations (48) et (49).

L'équation (43) est une véritable équation de transport du type (8) que nous traitons par une méthode conservative classique en l'intégrant sur la section d'un tore. L'élément d'intégration est donc r dr dz. (48) et (49) ne sont pas de véritables équations de transport du type (8) en coordonnées polaires. On peut sans doute les considérer comme telles en ajoutant dans le terme source des dérivées de ψ, ρ, ω et μ [10]. Mais cela nous paraît compliquer le calcul, sans avantage réel. Nous intégrerons donc (48) et (49) avec l'élément d'intégration dr dz comme si l'on était en coordonnées cartésiennes. Cela nous permettra de conserver chaque fonction dans les termes "convectifs" et "diffusifs", ce qui facilite l'étude de la convergence au II-5.3.3.

II - 5.I.2. Discrétisation des équations aux points intérieurs

Nous faisons sur la section de l'espace annulaire un maillage à pas variables dont les lignes sont les lignes pleines de la figure. On intercale les lignes pointillées équidistantes entre les lignes pleines.

Détaillons la discrétisation de l'équation (43). Compte tenu de (45), (46) et (47), (43) peut s'écrire :

$$-\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(T\frac{\partial \psi}{\partial z}\right) + \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial z}\left(T\frac{\partial \psi}{\partial r}\right) = \frac{1}{rRePr}\left(\frac{\partial}{\partial r}\left(\lambda r\frac{\partial T}{\partial r}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(\lambda r\frac{\partial T}{\partial z}\right)\right) \qquad (43')$$

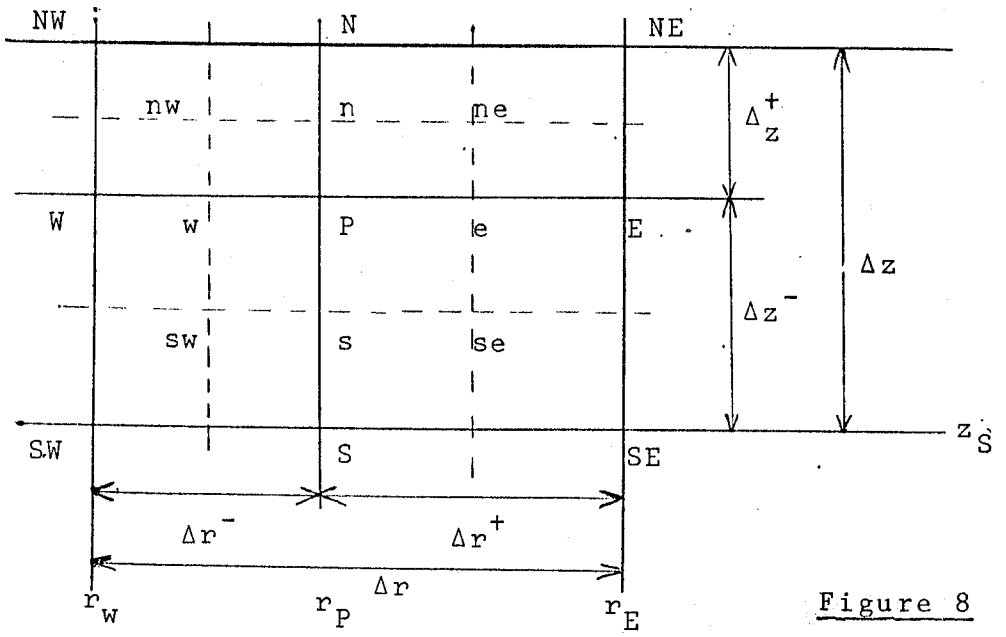


Figure 8

En intégrant (43') sur le tore dont la section est le carré nw ne se sw, on obtient :

$$\int_{zs}^{zn}\int_{r_w}^{re} \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(-T\frac{\partial\psi}{\partial z} - \frac{\lambda r}{RePr}\frac{\partial T}{\partial r}\right) r\,dr\,dz +$$

$$\int_{r_w}^{re}\int_{z_s}^{zn} \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial z}\left(T\frac{\partial\psi}{\partial r} - \frac{\lambda r}{RePr}\frac{\partial T}{\partial z}\right) r\,dr\,dz = 0$$

Soit, après une première série d'intégrations :

$$-\int_{zs}^{zn}\left[T\frac{\partial\psi}{\partial z} + \frac{\lambda r}{RePr}\frac{\partial T}{\partial r}\right]_{rw}^{re} dz + \int_{rw}^{re}\left[T\frac{\partial\psi}{\partial r} - \frac{\lambda r}{RePr}\frac{\partial T}{\partial z}\right]_{z_s}^{zn} dr = 0 \quad (78)$$

C'est à ce stade que commencent les approximations.

Approximation des termes diffusifs

Ce sont les termes où apparaît le coefficient de transport (ici λ). Nous utilisons l'approximation la plus naturelle en remplaçant les dérivées de T par les différences centrées (64
Soient I_d l'intégrale des termes diffusifs et I_{de} sa partie E

$$I_{de} = -\frac{r_e}{RePr}\int_{z_s}^{zn} \lambda_e \left(\frac{\partial T}{\partial r}\right)_{r=r_e} dz$$

$\left(\frac{\partial T}{\partial r}\right)_{r=re}$ est remplacée par $\frac{T_E - T_P}{h^+}$

λ_e est remplacé par $\frac{\lambda E + \lambda P}{2}$

Si l'on suppose toutes ces quantités constantes sur le rectangle,

$$I_{de} = \frac{\Delta z}{2} \frac{r_e}{RePr} \left(\frac{\lambda E + \lambda P}{2}\right) \left(\frac{T_p - T_E}{h^+}\right) \qquad (79)$$

On utilise des formules analogues pour les autres termes. L'approximation obtenue est donc d'ordre 2. Elle peut s'écrire :

$$I_d = DE(T_p - T_E) + DW(T_p - T_W) + DN(T_p - T_N) + DS(T_p - T_S) = 0$$

avec DE, DW, DN et DS strictement positifs.

Approximation des termes convectifs

Ce sont les termes où apparaît la vitesse (dérivées de ψ). L'intégrale des termes convectifs est :

$$I_c = -\int_{z_s}^{z_n} \left[T \frac{\partial \psi}{\partial z}\right]_{r_w}^{r_e} dz + \int_{r_w}^{r_e} \left[T \frac{\partial \psi}{\partial r}\right]_{z_s}^{z_n} dr$$

Ic est donc la somme de 4 termes. Détaillons le terme Est.

$$I_{ce} = -\int_{z_s}^{z_n} \left(T \frac{\partial \psi}{\partial z}\right)_{r=r_e} dz$$

Si les fonctions $T(r_e, \cdot)$ et $\frac{\partial \psi}{\partial z}(re, \cdot)$ sont continues et bornées, on peut appliquer à I_{ce} le théorème de la moyenne.

$$I_{ce} = -\bar{T}_e \int_{z_s}^{z_n} \left(\frac{\partial \psi}{\partial z}\right)_{r=r_e} dz$$

Donc $I_{ce} = -\bar{T}_e (\psi_{ne} - \psi_{se})$

ψ_{ne} et ψ_{se} se calculent en faisant la moyenne entre les valeurs de ψ aux quatre points voisins.

Donc $I_{ce} = -\bar{T}_e \left(\frac{\psi_{NE} + \psi_N - \psi_{SE} - \psi_S}{4}\right)$

Il reste à évaluer $\bar{T}_e$. Le plus naturel consisterait à écrire $\bar{T}_e = T_e = \frac{T_p + T_E}{2}$ (schéma centré). Mais le schéma d'ordre deux issu de cette formule est conditionnellement stable [11] et il n'est pas question de l'utiliser puisque ψ est à priori inconnu.

Suivant GOSMAN et al.[12], nous adopterons donc le schéma de LELEVIER [4] pour les équations de transport (43) et (49). Ce schéma consiste à poser $\bar{T}_e = T_E$ si $\psi_{ne} - \psi_{se} \geq 0$ et $\bar{T}_e = T_p$ si $\psi_{ne} - \psi_{se} \leq 0$.

Comme $\psi_{ne} - \psi_{se}$ est l'approximation de $\frac{h}{2}(\frac{\partial \psi}{\partial z})_e = -\frac{h}{2}\rho_e r_e v_e$, on prend pour T_e la valeur de T au point du maillage situé en amont de e par rapport au courant selon la direction Est-Ouest. D'où le nom de schéma UPWIND.

L'approximation correspondante de I_{ce} est d'ordre 1 et tend même vers l'ordre deux lorsque Re tend vers l'infini[11]. On peut montrer en écoulement unidimensionnel [4][11] que le schéma de LELEVIER est inconditionnellement stable.

Avec l'hypothèse faite, l'intégrale I_{ce} s'écrit :

$$I_{ce} = T_E\left(\frac{\psi_{se}-\psi_{ne}-|\psi_{se}-\psi_{ne}|}{2}\right) + T_p\left(\frac{\psi_{se}-\psi_{ne}+|\psi_{se}-\psi_{ne}|}{2}\right), \text{ soit encore}$$

$$I_{ce} = (T_p-T_E)\left(\frac{\psi_{ne}-\psi_{se}+|\psi_{ne}-\psi_{se}|}{2}\right) + T_p(\psi_{se}-\psi_{ne}) \qquad (80)$$

$$I_{CW} = (T_p-T_W)\left(\frac{\psi_{sw}-\psi_{nw}+|\psi_{sw}-\psi_{nw}|}{2}\right) + Tp(\psi_{nw}-\psi_{sw}) \qquad (81)$$

$$I_{cn} = (T_p-T_N)\left(\frac{\psi_{nw}-\psi_{ne}+|\psi_{nw}-\psi_{ne}|}{2}\right) + T_p(\psi_{ne}-\psi_{nw}) \qquad (82)$$

$$I_{cs} = (T_p-T_S)\left(\frac{\psi_{se}-\psi_{sw}+|\psi_{sw}-\psi_{nw}|}{2}\right) + T_p(\psi_{sw}-\psi_{se}) \qquad (83)$$

d'où :

$I_c = CE(T_p-T_E) + CW(T_p-T_w) + CN(T_p-T_N) + C_s(T_p-T_S)$

CE, CW, CN et CS étant respectivement les coefficients de $(Tp-T_E)$, (T_p-T_w), (T_p-T_N) et (T_p-T_S) dans (80),(81), (82), (83). Les coefficients de TP s'annulent.

Les termes CE, CW, CN et CS sont tous positifs ou nuls, ce qui est essentiel pour la résolution du système discrétisé comme nous le verrons au II-5.2.

L'équation (43) discrétisée s'écrit donc :

$$AE(T_p-T_E) + AW(Tp-T_W) + A_N(T_p-T_N) + A_S(T_p-T_S) = 0 \qquad (84)$$

Les coefficients AE = DE + CE, AW = DW + CW, AN = DN + CN et AS = DS + CS sont tous strictement positifs.

Les autres équations se discrétisent de manière analogue, avec la différence que nous avons signalée au II-5.1.1. L'élément d'intégration n'est plus r dr dz, mais dr dz.

Ecrivons (48) intégrée sur le carré nw ne se sw.

$$\int_{r_w}^{r_e}\int_{z_s}^{z_n} \left(\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{1}{\rho r}\frac{\partial \psi}{\partial r}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{1}{\rho r}\frac{\partial \psi}{\partial z}\right) - \omega\right) dr\, dz = 0$$

Les deux premiers termes se traitent exactement comme le terme diffusif de (43). Le troisième, qui est un terme source, se calcule par la formule de la moyenne :

$\int_{r_w}^{r_e}\int_{z_s}^{z_n} dr\, dz = \frac{\overline{\omega}}{4} x\ hk$. On remplace bien sûr $\overline{\omega}$ par ω_p.

Ecrivons maintenant (49) intégrée sur le même carré.

$$\int_{r_w}^{r_e}\int_{z_s}^{z_n} \left[-\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{\omega}{r}\frac{\partial \psi}{\partial z}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{\omega}{r}\frac{\partial \psi}{\partial r}\right) - \frac{1}{Re}\left(\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}(\mu r \omega)\right) + \frac{\partial^2}{\partial z^2}(\mu\omega)\right)\right.$$

$$\left. - \frac{1}{Fr}\frac{\partial \rho}{\partial r} - S(\omega)\right] dr\, dz = 0$$

Les termes convectifs N° 1 et 2 se traitent comme les termes convectifs de (43) en remplaçant T par ω et en divisant par r les dérivées de ψ.

Les termes diffusifs N° 3 et 4 se traitent comme les termes diffusifs de (43) en remplaçant RePr par Re, λr par $\frac{1}{r}$ et T par $\mu r\ \omega$.

Les termes sources N° 5 et 6 se traitent comme celui de (48) après intégration de $\frac{\partial \rho}{\partial r}$ par rapport à r.

II - 5.I.3. Discrétisation des conditions aux limites

Fonctions fixées indépendamment des autres. C'est la condition de Dirichlet la plus simple, que l'on a pour toutes les fonctions à l'entrée, pour ψ sur les parois et pour T sur les parois en dehors du prolongement.

Il suffit de remplacer la fonction par sa valeur.

Vorticité aux parois La vorticité est fixée, mais en fonction de ψ par la relation $\omega = -\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{1}{\rho r}\frac{\partial \psi}{\partial r}\right)$ (51)
On intègre cette équation sur la partie du carré entourant le point qui se trouve à l'intérieur du domaine.

Supposons par exemple que l'on est sur la paroi intérieure (frontière Ouest)

$$\int_P^e \omega\, dr = -\left[\frac{1}{\rho r}\frac{\partial \psi}{\partial r}\right]_P^e$$

$$= -\frac{1}{\rho_e r_e}\left(\frac{\partial \psi}{\partial r}\right)_e \quad \text{puisque } \frac{1}{\rho_P r_P}\left(\frac{\partial \psi}{\partial r}\right)_P = v_P \text{ est nul}$$

On approche l'intégrale par la formule de la moyenne et la dérivée par la différence centrée (64), ce qui nous donne une approximation d'ordre deux avec la formule :

$$\frac{\omega_P + \omega_e}{2} \times \frac{\Delta r^+}{2} = \frac{\psi_P - \psi_E}{\Delta r^+} \times \frac{4}{(\rho_P+\rho_E)(r_P+r_E)} \qquad (85)$$

Conditions de flux à la sortie. Pour toute fonction y, on a la condition de Neumann $\frac{\partial y}{\partial z} = 0$ à la sortie du réacteur. Nous approchons la dérivée par la différence arrière du type (63), ce qui donne la formule d'ordre 1 : $\frac{y_P - y_S}{\Delta z^-} = 0$ (86)

Les approximations d'ordre plus élevé pour cette conditions sont instables.

Température dans le prolongement du substrat. Nous avons encore une condition de flux avec, en plus, une dérivée tangentielle:

$$\lambda_a \frac{d^2 T_1}{dz^2} = -\frac{2}{r_1} \left(\lambda \frac{\partial T}{\partial r}\right)_{r=r_1} \qquad (56)$$

Cette équation résulte d'un bilan thermique établi au I-5.3.2 . Nous reprenons donc ce bilan pour l'approximation, en intégrant (56) dans le cylindre solide entre z_s et z_n.

$$\int_{z_s}^{z_n} \left(\frac{2\lambda}{r_1} \frac{\partial T}{\partial r} - \lambda_a \frac{d^2 T_1}{dz^2}\right) dz = 0$$

Si l'on suppose λ, λ_a et $\frac{\partial T}{\partial r}$ constants entre z_s et z_n, l'égalité précédente devient:

$$\frac{\Delta z}{r_1} \lambda_P \frac{\partial T}{\partial r} - \lambda_{aP} \left[\frac{dT_1}{dz}\right]_s^n = 0$$

En remplaçant $\frac{dT_1^2}{dz^2}$ par la différence centrée (64) et $\frac{\partial T}{\partial r}$ par la différence avant (63), on obtient l'équation:

$$\frac{\lambda_p \Delta z}{\lambda_{ap}\, r_1 \Delta r^+}(T_P - T_E) + \frac{T_P - T_N}{\Delta z^+} + \frac{T_P - T_S}{\Delta z^-} = 0 \qquad (87)$$

(87) approche la condition limite à l'ordre 1 en Δr et 2 en Δz.

II- 5.2. Solubilité et stabilité du problème discret

Nous venons de définir une approximation consistante de notre problème par trois systèmes d'équations qui s'écrivent matriciellement:

$A(\psi)\ \psi = \omega$

$A(\omega)\ \omega = f(\psi) + g\ (T)$

$A(T)\ T = 0$

$A(\psi)$ ne dépend que de T.

$A(\omega)$ dépend de T et ψ

$A(T)$ dépend de T et ψ (de ψ uniquement si λ est constan

Le problème (P_h) est donc non linéaire du fait de ces matrices qui dépendent des fonctions.

Mais chaque système pris séparément est linéaire (du moins si l'on suppose la conductivité thermique constante dans (43)). Ceci nous permettra de résoudre (P_h) comme un problème linéaire et d'en faire une étude locale en "gelant" une ou deux des trois fonctions.

Il se pose alors trois questions qui sont par ordre de difficulté croissant:

1°)Chacun des trois systèmes a-t-il une solution quand on suppose les inconnues secondaires fixées?

2°)Le problème global (P_h) a-t-il une solution ?

3°)L'approximation est-elle stable, autrement dit (P_h) est-il bien posé ?

Nous allons répondre affirmativement au (1°) en montrant que les matrices A(ψ), A(ω) et A(T) sont inversibles pour toutes les valeurs des paramètres Re, Gr et Pr (lorsque Re > 0 et Pr > 0).

Cela est nécessaire pour que le (2°) et le (3°) soient vrais, mais certainement pas suffisant. Il existe en effet des valeurs de Re et Gr pour lesquelles le régime permanent n'existe pas. Donc (P) est mal posé, et (P_h) qui, lui, est consistant est également mal posé.

I-5.2.I. Les matrices A sont f.d.d.

Température: en tout point P intérieur au maillage, l'équation (43) discrétisée peut s'écrire:

$$AE\ (T_P-T_E) + AW\ (T_P-T_W) + AN\ (T_P-T_N) + AS\ (T_P-T_S) = 0 \qquad (84)$$

avec AE, AW, AN et AS strictement positifs. Donc le coefficient de T au point P est égal en valeur absolue à la somme des coefficients des quatre points voisins.

Si P n'a aucun voisin sur une frontière où T est connu, la ligne correspondante de la matrice A(T) est donc f.d.d. quelle que soit la numérotation des inconnues.

Si P a au moins un voisin pour lequel T est connu

par une condition de Dirichlet , alors la ligne correspondante est F.d.d.

Supposons en effet T_S connue par exemple. Il n'y a alors plus que 4 inconnues au plus dans (84), qui peut s'écrire:

$$AE\ T_E + AW\ T_W + AN\ T_N - (AE+AW+AN+AS)\ T_P = -\ AS\ T_S$$

Le coefficient de T_P est donc strictement supérieur à la somme des trois autres en valeur absolue.

Si P est un point de la sortie du réacteur, l'équation correspondante s'écrit: $T_P - T_S = 0$ (86), et la ligne correspondante est f.d.d.

Si P est un point du prolongement du susbtrat, l'équation s'écrit:

$$AE\ (T_P-T_E) + AN\ (T_P-T_N) + AS\ (T_P-T_S) = 0$$

avec AE, AN et AS strictement positifs fournis par (87). Donc la ligne est encore f.d.d.

Nous avons donc montré que la matrice A(T) est f.d.d.

Fonction courant: on démontre de la même manière que la matrice $A(\psi)$ est f.d.d.

Vorticité: le problème est plus compliqué pour la vorticité car en coordonnées polaires et avec les propriétés physiques variables, la fonction convectée et la fonction diffusée ne sont pas les mêmes dans l'équation (49) [10].

L'intégrale des termes convectifs peut s'écrire comme pour la température:

$$I_c = \frac{CE}{r_e}(\omega_P-\omega_E) + \frac{CW}{r_W}(\omega_P-\omega_W) + \frac{CN}{r_P}(\omega_P-\omega_N) + \frac{CS}{r_P}(\omega_P - \omega_S)$$

CE, CW, CN et CS étant des quantités positives ou nulles données par les formules (80) à (83). Les termes convectifs ne posent donc pas de problème.

L'intégrale des termes diffusifs se calcule par la méthode exposée au I.5.1.2. On trouve:

$$I_d = \frac{\Delta z}{2}\left| \frac{1}{r_e} \frac{(\mu r\omega)_P-(\mu r\omega)_E}{\Delta r^+} + \frac{1}{r_w} \frac{(\mu r\omega)_P-(\mu r\omega)_W}{\Delta r^-} \right| + \frac{\Delta r}{2}\left| \frac{(\mu\omega)_P-(\mu\omega)_N}{\Delta z^+} + \frac{(\mu\omega)_P-(\mu\omega)_S}{\Delta z^-} \right|$$

Pour montrer que la matrice $A(\omega)$ est f.d.d., il est donc nécessaire (et suffisant) de montrer que le coefficient de ω_P est en valeur absolue supérieur ou égal à la somme des coefficients de $\omega_E, \omega_W, \omega_N$ et ω_S, ce qui n'est pas du tout évident dans le cas général.

Si l'on suppose <u>μ constant</u> au voisinage de P, il suffit de montrer que :

$$r_P \left(\frac{1}{r_e \Delta r^+} + \frac{1}{r_w \Delta r^-}\right) \geq \frac{r_E}{r_e \Delta r^+} + \frac{r_W}{r_w \Delta r^-}$$

autrement dit: $\frac{r_P-r_E}{r_e \Delta r^+} + \frac{r_P-r_W}{r_w \Delta r^-} \geq 0$ et comme $\Delta r^+ = r_E - r_P$ et $\Delta r^- = r_P - r_W$, $-\frac{1}{r_e} + \frac{1}{r_W} \geq 0$, ce qui est bien vrai puisque $r_e > r_w$.

Donc toutes les lignes correspondant aux points intérieurs de $A(\omega)$ sont f.d.d.

Si μ n'est pas constant, il faudrait supposerque la surface $\mu(r,z)$ est concave, ce qui est vrai dans certains cas particuliers (à l'infini aval pour les gaz H_2, Mo F_6 et Ar puisque T est alors concave et μ fonction concave de T).

Nous n'entrons pas dans les détails.

Pour les lignes de $A(\omega)$ qui correspondent aux conditions aux limites, il est facile de démontrer comme précédemment qu'elles sont f.d.d. (parois) ou f.d.d. (sortie).

Donc la matrice $A(\omega)$ est également f.d.d. (si l'on suppose la viscosité constante dans chaque maille).

I.5.2.2. Les matrices A sont irréductibles.
Pour le démontrer il suffit de montrer que leur graphe est fortement connexe [5].

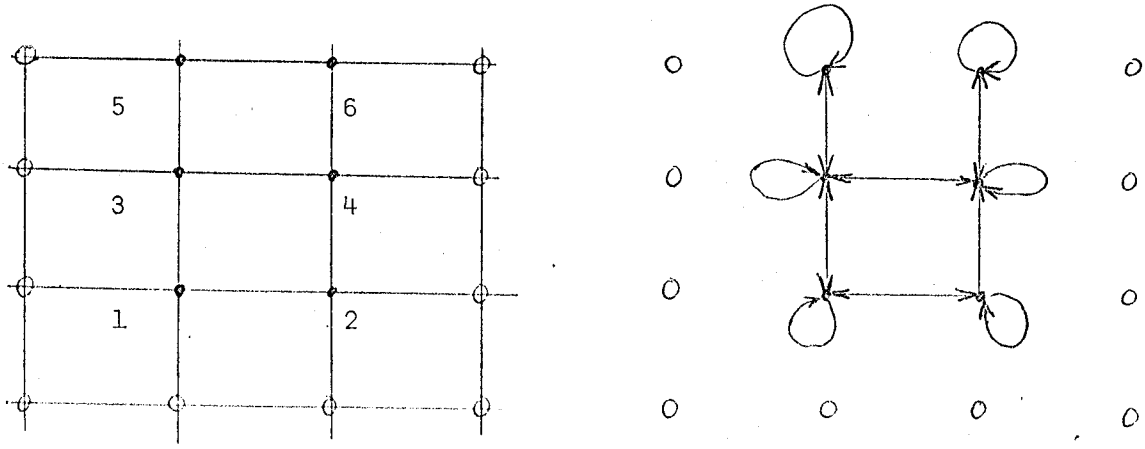
Rappelons que le graphe d'une matrice carrée A(n,n) est constitué par une famille de n points du plan numérotés de 1 à n. On met une flèche du point i vers le point j si a_{ij} est non nul.

On dit que le graphe de A est fortement connexe si deux points quelconques i et j peuvent toujours être connectés soit directement ($a_{ij} \neq 0$), soit par une série de points $k_1, \ldots k_p$ tels que $a_{ik_1} \neq 0$, $a_{k_i k_{i+1}} \neq 0$ pour i=1, p-1 et $a_{k_p j} \neq 0$.

Mettons en évidence cette forte connexité par une exemple simple. On considère l'équation:

$$\frac{\partial}{\partial r}\left(\frac{1}{\rho r}\frac{\partial \psi}{\partial r}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(\frac{1}{\rho r}\frac{\partial \psi}{\partial z}\right) = -\omega \qquad (48)$$

discrétisée sur un maillage à 16 points représenté sur la figure ci-dessous:



. Maillage . Graphe de la matrice

Figure 9

La fonction ψ étant connue à l'entrée et aux parois, elle n'est inconnue qu'en 6 points dont 4 à l'intérieur et 2 à la sortie. La matrice $A(\psi)$ est donc de dimension 6. Avec la numérotation que nous avons adoptée, elle s'écrit:

$$\begin{pmatrix} a_{11} & a_{12} & a_{13} & 0 & 0 & 0 \\ a_{21} & a_{22} & 0 & a_{24} & 0 & 0 \\ a_{31} & 0 & a_{33} & a_{34} & a_{35} & 0 \\ 0 & a_{42} & a_{43} & a_{44} & 0 & a_{46} \\ 0 & 0 & -1 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

Les a_{ij} qui ne sont pas remplacés par 0 ne sont jamais nuls.

A ayant 6 lignes, son graphe présente 6 noeuds que nous plaçons comme les noeuds du maillage correspondants.

Chaque noeuds du graphe est connecté à lui-même puisque les termes diagonaux sont tous non nuls.

Si deux noeuds du maillage sont reliés par un segment intérieur au maillage, les deux noeuds du graphe correspondant sont connectés dans les deux sens. Cette propriété est fondamentale.

Grâce aux deux propriétés précédentes, le graphe de la matrice $A(\psi)$ est fortement connexe. Donc $A(\psi)$ est irréductible.

Plus généralement nous définissons comme maillage d'intérieur connexe un maillage tel que deux de ses points peuvent être reliés par une série de segments intérieurs au maillage. Dans un domaine rectangulaire, les maillages sont toujours d'intérieur connexe.

Si le maillage est d'intérieur connexe et si pour toute fonction y l'équation discrétisée peut s'écrire:

$$AE\,(y_P-y_E) + AW(y_P-y_W)+AN(y_P-y_N)+AS(y_P-y_S)+AP\,y_P = F_P \quad (88)$$

en tout point intérieur au maillage, avec AE,AW,AN,AS strictement positifs et AP $\geq$ 0, alors la matrice A(y) est irréductible.

C'est bien le cas pour les fonctions ψ,ω et T.

Nous avons donc montré que les matrices A sont i.f.d.d, donc inversibles. Par conséquent, la résolution du problème (P_h) est toujours possible en théorie.

Il reste à le résoudre en pratique, c'est-à-dire à construire une méthode itérative de résolution du problème matriciel.

II - 5.3. Résolution du problème discret

Suivant les équations, nous utilisons la méthode de Gauss-Seidel (G.S.) ou de surrelaxation (S.O.R) par point. Décrivons brièvement ces méthodes.

II-5.3.1. Définition des méthodes itératives

On considère un système linéaire Ay = b (89)
où A est une matrice carrée d'ordre n supposée inversible et y et b des vecteurs de dimension n. Soit y^o un vecteur de départ de l'itération.

Construire une méthode itérative, c'est fabriquer à partir de A une matrice d'itération B telle que le système y = By + q soit équivalent à (89). On définit l'itération par la relation $y^{p+1} = By^p + q$. On dira que l'itération est convergente si la suite des itérés y^o, y^1,...y^p converge vers la solution $y = \bar{A}^1$ b de (89). Il ne faut pas confondre cette convergence avec la convergence de l'approximation d'un problème aux dérivées partielles que l'on a vue au II.3.

Soient D la partie diagonale de A, -E sa partie sous-diagonale et -F sa partie sur-diagonale, de sorte que:

$$A = D-E-F$$

On appelle matrice de Gauss-Seidel la matrice $G=(D-E)^{-1} F$.

G est telle que $Ay = b$ équivaut à $y = G y + (D-E)^{-1} b$ si aucun terme diagonal de A n'est nul.

On appelle matrice de surrelaxation la matrice: $L_\omega = (D-\omega E)^{-1} \left((1-\omega) D+\omega F \right)$ où ω est le paramètre de surrelaxation (compris entre 0 et 2).

On appelle matrice de Jacobi la matrice $J = D^{-1} (E+F)$.

Les méthodes de Jacobi, Gauss-Seidel et S.O.R. sont donc des méthodes itératives définies par les matrices J, G, L_ω. Pour plus de précision sur les méthodes, nous renvoyons le lecteur aux ouvrages de Gastinel[5], Varga[6] ou Young[13]. La mise en oeuvre de ces méthodes pose au moins trois problèmes:

- la détermination des conditions de convergence. C'est sur ce point que nous avons principalement travaillé;

- la détermination du paramètre optimal de surrelaxation. C'est un problème bien connu lorsque A est symétrique à coefficients constants. Il est ici considérablement compliqué par la non linéarité et par le maillage à pas variables;

- le choix du test d'arrêt et le contrôle de l'erreur. Pour les méthodes par point, le calcul de l'erreur est aussi coûteux que le calcul des fonctions. Nous nous contenterons donc d'un test sur le résidu $r^n = Ay^n-b$. Bien entendu, si l'approximation est stable, (P_h) est bien conditionné et l'erreur est du même ordre que le résidu pour la norme choisie.

II-5.3.2. Convergence des méthodes J,G.S. et S.O.R.pour notre problème.

Nous n'utiliserons qu'un seul théorème de convergence classique [13].

Théorème I. Si la matrice A est i.f.d.d., alors les méthodes de Jacobi et Gauss-Seidel par point convergent vers la solution du problème Ay=b quel que soit le vecteur de départ y^0. La méthode S.O.R. converge également pour $0<\omega\leqslant\frac{2}{1+\rho(J)}$, $\rho(J)$ étant le rayon spectral de la matrice de Jacobi.

Nous avons montré en I-5.2 que les matrices $A(\psi)$, $A(\omega)$ et $A(T)$ sont i.f.d.d. La méthode de Gauss Seidel que nous utilisons est donc convergente. Pour la surrelaxation, il convient d'être plus prudent puisque J varie avec les itérations.

Robert a énoncé un théorème analogue pour les méthodes par blocs [14] avec une hypothèse de bloc diagonale dominance, ou plus généralement de bloc H matrice. Cette hypothèse est ici difficile à vérifier du fait des coefficients variables, qui rendent les majorations habituelles de rayons spectraux trop fortes.

II-5.3.3. Généralisation aux problèmes aux dérivées partielles elliptiques du second ordre.

Nous avons établi la convergence à partir de propriétés de la matrice de discrétisation qui sont communes à une classe très large de problèmes elliptiques.

Considérons en effet un problème linéaire à coefficients variables:

$$A(r,z)\frac{\partial^2 y}{\partial r^2}+B(r,z)\frac{\partial^2 y}{\partial z^2}+C(r,z)\frac{\partial y}{\partial r}+D(r,z)\frac{\partial y}{\partial z}+E(r,z)=0 \qquad (90)$$

avec $A>0$, $B>0$.

S'il y a des dérivées croisées, on peut se ramener à la forme (90) par un changement de variables.

On suppose que les conditions aux limites sont de Dirichlet ($y=f(r,z)$) ou de Neumann ($\frac{\partial y}{\partial \bar{n}} = f(r,z)$), $\bar{n}$ étant la normale à la frontière. Mais on peut admettre d'autres conditions aux limites comme on l'a vu au II-5.3.2.

On fait sur le domaine d'intégration D un maillage à pas variables Δr et Δz et l'on suppose qu'à partir d'un certain degré de finesse $\text{Max}(\Delta r) < h$ et $\text{Max}(\Delta z) < h$, le maillage est d'intérieur connexe, c'est-à-dire que l'ensemble des noeuds du maillage non situés sur la frontière ne peut être décomposé en deux ensembles M_I et M_2 tels que pour tout point P de M_1, les points E,W,N et S définis au I.5.I.I. n'appartiennent pas à M_2.

La classe des domaines qui possèdent cette propriété est une classe très large qui comprend tous les convexes et les unions finies de convexes dont les intérieurs ne sont pas disjoints.

On définit une approximation (P_h) par discrétisation complète comme suit:

Les dérivées première et seconde aux points intérieurs sont remplacées par les différences centrées (64) et (65). La dérivée normale en un point P de la paroi est remplacée par la différence décentrée $\frac{U_Q - U_P}{PQ}$, Q étant la première intersection de la normale avec un point de maillage.

Nous pouvons maintenant énoncer le:

Théorème 2. Soient (P) un problème elliptique et (P_h) son approximation définie comme précédemment.

Si le maillage est d'intérieur connexe, et si y est fixé en au moins un point de la frontière, alors:

I°) Si C=D=0, les méthodes de Jacobi, Gauss-Scidel et S.O.R. (pour $0 < \omega \leqslant \frac{2}{1+\rho(J)}$)par point convergent vers la solution de (P_h) quel que soit le maillage adopté et quelle que soit la numérotation des inconnues.

2°) Si le problème comporte des termes du premier ordre, on retrouve les conclusions précédentes en supposant:

$$\text{Min} \left| \frac{A}{C\Delta r} \right| \geqslant \frac{I}{2} \quad \text{et} \quad \text{Min} \left| \frac{B}{D\Delta y} \right| \geqslant \frac{I}{2}$$

Plus généralement, pour toute approximation pouvant se mettre sous la forme (88) et telle que AE, AW, AN et AS soient strictement positifs en tout point intérieur, les méthodes précédentes convergent.

Démonstration. Avec les hypothèses adoptées, la matrice A du problème (P_h) est i.f.d.d.

La faible diagonale dominance se démontre comme au II-5.2. Nous avons fait une démonstration détaillée en [15].

L'irréductibilité résulte de la connexité du maillage. Soient deux lignes quelconques i et j de la matrice A de (P_h). Le maillage étant d'intérieur connexe, il existe une série de segments $k_I \; k_2$, $k_2 \; k_3$,...$k_{p-1} \; k_p$, avec $k_1=i$ et $k_p=j$ tous situés dans l'intérieur de D, et tels que $a_{k_i k_{i+1}}$ soit toujours non nul puisqu'en tout point intérieur, AE, AW, AN et AS sont strictement positifs comme on l'a démontré en (I5). Donc la matrice A est de graphe fortement connexe. Elle est par conséquent irréductible.

A étant i.f.d.d., la convergence résulte du théorème I.

II-5.3.4. Suites à donner à l'étude du problème discret

Nous n'avons pas fait tout ce que nous aurions souhaité faire. Il resterait:

- à améliorer le test d'arrêt. Nous avons fait un test sur le résidu du système Ay=f en arrêtant les itérations lorsque Max $|Ay-f|_i < \varepsilon$, ε étant de l'ordre de $10^{-3} \times |f|$. Il faudrait faire des bilans physiques globaux sur une maille pour l'énergie et la quantité de mouvement, ou bien essayer de majorer l'erreur sur y;

- à optimiser les paramètres de surrelaxation. Cela demanderait certainement beaucoup d'essais numériques. En effet, le paramètre optimal de surrelaxation dépend de la matrice, qui varie avec les équations, mais aussi avec les données numériques Re, Gr et avec le maillage. L'équation qui pose le moins de problème est celle de ψ (48) qui ne présente pas de termes convectifs. Nous avons pris $\omega = 1.5$. Pour la vorticité, il est déconseillé de surrelaxer [12]. Nous avons pris $\omega=1$. Quant à T, le ω optimal varie énormément avec le nombre de Grashof (entre 0,5 et 1,8).

On pourrait essayer la méthode proposée par Young ([13], VI-6) qui consiste à calculer itérativement une estimation du ω optimal. Cette méthode a été testée avec succès même avec des matrices non symétriques. Mais elle est intéressante si l'on se sert plusieurs fois de la même matrice, ce qui n'est pas notre cas;

- à essayer des méthodes par blocs. Ces méthodes ont l'avantage de converger plus rapidement en général, et plus particulièrement dans notre cas, car elles permettent de tenir compte des couplages linéaires entre les équations comme on l'a vu au I.5.2. Un autre avantage est que l'on peut calculer avec un coût raisonnable une majoration en norme vectorielle de l'erreur [14].

BIBLIOGRAPHIE DU CHAPITRE II

[I] J.L.LIONS "Quelques résultats d'existence dans les équations aux dérivées partielles non linéaires". Bull. Soc. Math. France (I959).

[2] S.K.GODUNOV & V.S.RYABENKI "The theory of difference schemes".North Holland Publishing Company Amsterdam (I964).

[3] N.GASTINEL "Itérations Méthodes Discrètes". Cours polycopié de Maîtrise d'informatique Grenoble (I969).

[4] R.D.RICHTMYER & K.W. MORTON "Difference Methods for Initial Values Problems". (2° Ed.) Interscience Publishers, New York (I967).

[5] N.GASTINEL "Analyse Numérique Linéaire". Hermann Paris (I966

[6] R.S.VARGA "Matrix Iterative Analysis". Prentice Hall, New York (I962).

[7] J.R.BODOIA & J.F.OSTERLE "The development of free convection between heated vertical plates". J.Heat Transfer 84 (I962).

[8] Ph.VERNIER "Leproblème des propriétés physiques variables dans un écoulement monophasique dans un canal chauffant prismatique vertical".Int. J.Heat and Mass Transfer Vol 13, pp.1199-1214- Pergamon Press (1970).

[9] J.E.MAZILLE "Résolution numérique d'un système d'équations d'évolution non linéaires". Séminaire d'Analyse Numérique Grenoble (I972).

[10] Ph.VERNIER- Communication personnelle.

[11] D.GRAND, A.LATROBE & Ph.VERNIER- "Hydrodynamique des courants de recirculation dans une cavité. 1ère partie "Ecoulements isothermes". Rapport CEA R.4448, Grenoble (1973).

[12] GOSMAN et al. Référence 10, chapitre I.

[13] D.M.YOUNG "Iterative Solution of Large Linear Systems" Academic Press, New-York (1971).

[14] F.ROBERT "Etude et utilisation de normes vectorielles en analyse numérique linéaire"- Thèse Grenoble (1968).

[15] J.E.MAZILLE "Discrétisation de problèmes aux dérivées partielles elliptiques". Séminaire d'Analyse Numérique , Grenoble (1973).

CHAPITRE III

RESULTATS

III- 1. CONSIDERATIONS NUMERIQUES

L'essentiel du travail présenté ici a été l'élaboration de deux programmes de calcul écrits en FORTRAN correspondant aux méthodes parabolique et elliptique que nous avons décrites au II-4 et II-5. Il y a bien sûr de nombreux sous-programmes annexes permettant par exemple le calcul des conditions initiales ou aux limites, ou bien le calcul des propriétés physiques du mélange (figure 10). Nous avons utilisé selon les cas l'ordinateur IBM 360-50 de la CISI GRENOBLE, ou le 360-91 de la CISI SACLAY, le second étant 20 à 25 fois plus rapide que le premier.

Rappelons que l'on a besoin des résultats du code elliptique en écoulement homogène (II-5) pour faire le calcul du transfert de masse avec le code parabolique (II-4). Nous avons bien sûr vérifié que les deux codes donnent les mêmes résultats en écoulement homogène (trois chiffres significatifs coïncident). Cette vérification nous a d'ailleurs permis de constater que le second code est environ 20 fois plus rapide que le premier à précision égale.

III- 1.1. Programme parabolique

III-1.1.1. Maillage

Le rectangle de calcul est très allongé (1.25 sur 14 cm). Nous avons pris un maillage à pas constant un peu allongé dans le sens Oz avec 21 points sur Or et 141 points sur Oz.

On pourrait diminuer le nombre de points dans le sens Oz mais nous ne l'avons pas fait pour assurer la stabilité dans les cas critiques (III;1.2.3).

III- 1.1.2. Stabilité

Nous retrouvons les résultats annoncés au II-4. Le schéma est toujours stable si la vitesse axiale v est positive (Fr>0.1). Il tolère même de faibles vitesses négatives comme on peut le voir figure 18, ce qui est intéressant à noter.

La prise en compte des propriétés physiques variables augmente la stabilité dans notre cas.

III-1.1.3 Convergences

Il faut distinguer la convergence de l'approximation et la convergence des itérations sur chaque ligne. Nous avons essayé dans plusieurs cas de doubler le nombre de points du maillage sans changer les trois premiers chiffres pour les variables v, T et Y_i. Autrement dit, la convergence de l'approximation semble atteinte pour la norme du Max avec un test de 10^{-3}.

La vitesses radiale u semble converger plus difficilement, mais elle est toujours faible par rapport à v en valeur absolue.

La convergence des itérations sur chaque couche est atteinte en 3 ou 4 itérations avec le même test, sauf bien sûr s'il y a instabilité. Les itérations se mettent alors à converger très lentement,puis à osciller.

III- 1.1.4. Caractéristiques du programme

Le programme occupe environ 100 K en mémoire. Le temps d'exécution sur IBM 360-50 est de l'ordre de 2 mn pour le cas multicomposants, de 1 mn pour le cas homogène. En même temps que l'on fait les calculs, on trace les profils et couches limites dont nous parlerons au III-2.

III- 1.2 Programme elliptique

III- 1.2.1. Maillage

En raison des forts gradients de vorticité, et pour économiser la place en mémoire, on a pris un maillage à pas variables avec peu de points (21 selon Or, 50 selon Oz). Le maillage est deux fois plus serré aux parois dans le sens Or, au bas du substrat dans le sens Oz.

III- 1.2.2. Stabilités

Il faut ici encore distinguer la stabilité de l'approximation par rapport aux paramètres Re, Fr, Pr et T_1 et la stabilité des itérations par rapport à la valeur de départ. En pratique, nous avons vérifié que l'approximation était stable dans toute la zone où l'on pouvait faire converger les itérations. Par contre, si l'on est dans la zone critique que nous évoquons au III-1.2.3., il faut initialiser dans des conditions assez proches du résultat si on veut l'atteindre.

III- 1.2.3. Convergences

Pour la convergence des approximations, on reprend la même analyse qu'au III-1.1. La zone de convergence est bien sûr beaucoup plus large puisque l'on peut travailler avec Fr de l'ordre de 10^{-2}.

Notre test de convergence est Max $|Ay-b| < 10^{-4}$Max $|b|$. Nous avons bien sûr vérifié que lorsque ce test était satisfait, les fonctions y(courant, vorticité,températures) n'évoluaient plus avec les itérations.

La convergence des itérations est très sensible au nombre de froude Fr qui caractérise l'influence de la convection naturelle sur l'écoulement.Plus Fr est petit, et plus l'écoulement est complexe, avec de forts gradients de vorticité en particulier.

Si Fr est supérieur à 0.1, pas de problème. On est presque en convection forcée. Les itérations convergent très bien et on peut se permettre d'élever le coefficient de surrelaxation jusqu'à 1.5 pour la température et la fonction courant, 1.2 pour la vorticité.

Si Fr < 0.001 (cas voisin de la convection naturelle) il nous paraît impossible de faire converger les itérations.

Dans la zone intermédiaire, on est en convection mixte avec recirculation (le programme parabolique est instable).

On peut faire converger les itérations en sous relaxant l'équation du tourbillon. Dans les cas extrêmes, il faut faire descendre le paramètre de relaxation jusqu'à 0.3.

L'équation de l'énergie (43) ne semble pas poser en elle-même de problème de convergence.

Sur le plan pratique, cette zone critique est finalement assez étroite et peu intéressante puisque le programme parabolique est instable.

III- 1.2.4. Caractéristiques du programme

Le programme occupe environ 200 K en mémoire. Le temps d'exécution est de l'ordre de 20 mn (cas homogène) sur IBM 360-50.

III-2 INFLUENCE DES DIFFERENTS PARAMETRES

III-2.1 Choix de la grille des cas étudiés

Le choix des paramètres significatifs, des plages de valeur à leur donner et la réduction du nombre des cas étudiés à un minimum, est un problème complexe que nous n'avons pas résolu du premier coup. Nous avons finalement choisi quatre paramètres qui sont:

- la température T_1 du substrat en degrés K,
- la pression totale P en bars,
- la dilution dans l'hydrogène à l'entrée du réacteur. Cette dilution est caractérisée par le rapport

$$R = \frac{\text{débit molaire de } H_2}{\text{débit molaire de } MoF_6}$$

On fera varier R en faisant varier son numérateur.

- Le débit total D que nous exprimons en litre/seconde.

Notons que D varie lorsque R varie.

Ces paramètres sont bien sûr reliés aux paramètres adimensionnels Re, Gr, Pr, Fr, Sc et aux fractions massiques Y_i à l'entrée du réacteur.

Nous avons retenu 3 valeurs T_1, P et D et 4 valeurs pour R, ce qui fait en tout $3^3 x4 = 108$ possibilités.

Parmi ces 108 cas, nous en avons choisi 10 en tournant autour d'un cas central qui est le cas n°1.

Le tableau ci-dessous représente les grilles des cas étudiés.

cas n°	Figure	T_1(K)	P(bars)	R	D
1	11	1350	1	30	0.72
2	12	1050	1	30	0,72
3	13	1650	1	30	0,72
4	14	1050	0,1	30	0,72
5	15	1050	0,01	30	0,72
6	16	1350	1	99	2,32
7	17	1350	1	9	0,208
8	18	1350	1	7	0.162
9	19	1350	1	30	0.36
10	20	1350	1	30	1.44

Ces cas sont représentés par des séries de profils de températures, vitesses axiales et fractions massiques et molaires sur les figures 21 à 30. Ces courbes se lisent en déplaçant l'origine des ordonnées de 0,5 en 0,5 de bas en haut. On a

représenté en pointillés la couche limite thermique à 1% sur les profils de température et la couche limite de diffusion à 1% sur les profils de fraction massique de HF.

Notons que la température est normalisée par rapport à la température maximale.

III- 2.2. Influence de la température

III- 2.2.1 Influence aérothermique

On peut voir cette influence sur les figures 11, 12 et 13 où T vaut 1350, 1050 et 1650 degrés K. L'augmentation de température augmente bien entendu l'effet de la convection naturelle et les vitesses à la sortie sont beaucoup plus élevées dans le cas n° 13 que dans le cas n°12. Cela serait encore beaucoup plus spectaculaire si l'on s'était placé dans un cas où l'augmentation de température pouvait entraîner une recirculation (cas n°8).

III- 2.2.2. Influence sur le transfert de masse

Les coefficients de diffusion croissent avec la température, comme on l'a vu au I-2.2. On voit d'ailleurs bien qu'entre les figures 12 et 13 la couche limite de diffusion s'élargit.

Le transfert de masse est donc favorisé par la température comme on peut le voir figure 21. La vitesse de dépôt croît un peu moins vite que la température, la loi ayant l'allure $k_S = a\sqrt{T}$.

Toutefois, cet effet est certainement négligeable à côté de l'effet sur la cinétique chimique dans les cas où celle-ci intervient. Cet effet est de même sens, mais exponentiel.

III- 2.3. Influence de la pression

III- 2.3.1. Influence aérothermique

On peut voir cette influence sur les figures 12, 14 et 15 qui correspondent à 1, 0.1 et 0.01 bar.

La dépression augmente les coefficients de transport qui sont inversement proportionnels à P, donc régularise l'écoulement en élargissant les couches limites. Cela se voit particulièrement bien sur la figure 15.

III- 2.3.2. Influence sur le transfert de masse

Cette influence apparaît de manière spectaculaire sur les figures 12, 14 et 15 et sur la figure 22.

On peut se rendre compte que lorsque la pression décroît, la vitesse de dépôt décroît encore plus vite, donc le rendement baisse.

Par ailleurs, la couche limite s'élargit très vite jusqu'à occuper tout l'espace annulaire. A partir de ce moment, la veine gazeuse s'appauvrit en réactif et la vitesse de dépôt diminue très vite le long du substrat, pour devenir presque nulle à la sortie dans le cas 5 (figure 15).

Compte tenu des dimensions de notre réacteur, la pression apparaît donc comme un facteur défavorable, tant sur le plan de l'abondance que sur le plan de la régularité du dépôt selon Oz.

III- 2.4. Influence de la dilution

Les deux gaz que nous introduisons dans le réacteur ont des propriétés physiques très différentes, en particulier la masse volumique et la capacité calorifique. Les variations de proportion des deux gaz influencent considérablement les propriétés physiques du mélange, comme le montre la figure 10. On comprend alors les différences de comportement des mélanges plus ou moins dilués.

Rappelons que nous avons fait varier la dilution en laissant le débit de $Mo F_6$ constant.

III- 2.4.1. Influence aérothermique

On peut voir cette influence sur les figures 16, 11, 17,18 du plus dilué au moins dilué. Plus on concentre le mélange, plus le gaz est lourd et plus l'influence de la convection naturelle est forte. On voit la vitesse augmenter le long de la paroi chaude malgré l'augmentation de la viscosité, jusqu'à provoquer la recirculation au cas n°8. Cet effet est encore accentué par la convection naturelle de masse qui se produit au niveau du substrat, du fait de l'apparition d'un gradient de masse volumique provoqué par la disparition du gaz lourd à la paroi.

III- 2.4.2. Influence sur le transfert de masse

La vitesse de dépôt est très sensible à ce paramètre. Dans la zone que nous avons étudiée, où le rapport de dilution $R = \frac{X_1}{X_3}$ va de 7 à 99, elle décroît de 48.14 à 7.69 microns/minute (à la sortie) en suivant une courbe d'allure hyperbolique que l'on peut voir figure 23.

Contrairement à ce que l'on aurait pu s'imaginer, le profil longitudinal du dépôt n'est pas plus régulier dans le cas dilué.

Sur le plan du transfert de masse, la dilution est donc nettement défavorable, et on a intérêt à se rapprocher du rapport stoechiométrique qui est égal à 3. Dans le cadre de notre étude, on pourrait étudier le cas stoechiométrique en augmentant le débit.

Si l'on veut étudier ce cas sans changer de débit, on aura un écoulement avec recirculation, sans doute plus favorable pour la vitesse de dépôt, mais certainement instable.

III- 2.5. Influence du débit

III- 2.5.1. Influence aérothermique

On peut voir sur les figures 19, 11 et 20 que l'on

réduit l'effet de la convection naturelle en augmentant le débit, ce qui est bien connu. On limite également la diffusion de la chaleur et du HF en écrasant les couches limites.

III- 2.5.2. Influence sur le transfert de masse

La figure 24 montre que l'accroissement de la vitesse de dépôt avec le débit est presque insensible. Autrement dit, le rendement en dépôt baisse très vite quand le débit augmente.

Augmenter le débit ne sera donc pas une mesure pour accélérer le dépôt, mais pour stabiliser l'écoulement.

III-3 CONCLUSION

On peut tirer de cette étude deux sortes de conclusions, sur le plan physique et sur le plan mathématique.

III- 3.1. Etude physique

Nous avons élaboré un modèle qui nous paraît prendre en compte les phénomènes essentiels de l'aérothermochimie dans le cadre suivant: réacteur bi-dimensionnel en écoulement permanent avec une réaction infiniment rapide sur une paroi catalytique, et avec de forts gradients de températures et de concentrations. Compte tenu de ces gradients importants, nous avons introduit dans notre modèle les variations de toutes les propriétés physiques, ce qui nous paraît un pas en avant par rapport aux études précédentes. Les résultats numériques que nous avons obtenus sur les vitesses de dépôt fournissent à l'expérimentation des indications intéressantes sur des réactions contrôlées par le transfert de masse.

La température a un effet favorable, mais peu important sur le dépôt qui croît à peu près comme sa racine carrée.

La dépression ne semble pas intéressante sur le plan diffusionnel puisqu'elle diminue le rendement en dépôt

et sa régularité. Si, pour faciliter la réaction chimique l'expérimentateur préférait travailler à basse pression, nous lui conseillerions alors d'augmenter le débit. Avec le même réacteur et des vitesses d'écoulement supérieures, on risquerait d'atteindre des vitesses soniques dans les canalisations. Il semble donc préférable d'agrandir le réacteur à vitesses égale, ce qui permet d'avoir une couche limite d'épaisseur plus faible que le rayon hydraulique du réacteur, donc un apport constant en gaz réactif.

Essayer d'augmenter le débit total pour augmenter le dépôt ne semble pas une opération rentable. Dans le cadre de notre étude, il faut se placer au débit le plus faible qui évite la recirculation. Mais il n'est pas évident que l'on ait intérêt à éviter la recirculation. Si l'on voulait calculer le dépôt dans ce cas, il faudrait utiliser le programme elliptique après avoir trouvé des conditions aux limites satisfaisantes.

Le paramètre crucial est en fin de compte la proportion des constituants en raison de la présence d'un gaz lourd. Il semble intéressant de se rapprocher le plus possible des proportions stoechiométriques pour avoir le dépôt le plus abondant.

Nous voyons de nombreux types de prolongement possibles à cette étude. Il faudrait essayer de prendre en compte la diffusion thermique. On pourrait aussi utiliser nos codes de calcul pour voir ce qui se passe en changeant la géométrie du réacteur. Une forme de cône convergent permettrait d'écraser les couches limites et de régulariser le dépôt. Mais le prolonment le plus intéressant pour le chimiste serait le passage aux cas de dépôts régis par la cinétique chimique, ce qui demanderait bien sûr une expérimentation préliminaire pour déterminer les coefficients cinétiques de réaction, actuellement inconnus. On pourrait également passer au cas des écoulements à l'équilibre. Sur le plan de calcul, tout cela demanderait de changer les conditions aux limites et les termes sources dans les équations de diffusion.

III- 3.2. Etude mathématique

Nous sommes restés muets sur le plan de l'existence et de l'unicité de la solution de notre problème. Nous aurions pu bien sûr l'étudier en supposant les équations découplées et les propriétés physiques constantes. Mais cela nous ramènerait à des problèmes de Dirichlet linéaires et à un Navier-Stokes isotherme bi-dimensionnel qui commence à être bien connu.

Sur le plan algorithmique, nous avons démontré la stabilité de notre approximation parabolique pour des cas que nous avons effectivement rencontrés (convection forcée). Pour l'approximation elliptique, nous avons démontré la convergence des méthodes itératives pour chaque équation prise séparément, et nous avons étendu ce résultat à une classe très large de problèmes elliptiques, ce qui nous paraît assez intéressant.

En résumé, nous avons justifié nos algorithmes pour des problèmes de difficulté intermédiaire entre les problèmes linéaires classiques et notre problème.franchement non linéaire.

L'effort théorique qui nous paraît le plus urgent serait d'étudier l'existence de la solution du problème pour les petites valeurs du nombre de Froude Fr ou de construire de nouveaux algorithmes convergents qui montreraient en pratique cette existence.

A N N E X E

JUSTIFICATION THEORIQUE DU MODELE D'APPROXIMATION DE LA VISCOSITE DE L'ARGON EN FONCTION DE LA TEMPERATURE.

Nous proposons pour la viscosité μ et la conductivité thermique λ une loi du genre $\frac{\mu}{\mu_1} = \frac{\lambda}{\lambda_1} = \left(\frac{T}{T_1}\right)^a$, a étant un paramètre à ajuster à partir de valeurs expérimentales, l'indice 1 représentant la température maximale sur le dommaine d'approximation, de sorte que $0 \leq \frac{T}{T_1} \leq 1$.

Nous supposerons que toutes les valeurs expérimentales de $y_i = \frac{\mu_i}{\mu_1}$ ou $\frac{\lambda_i}{\lambda_1}$ se trouvent à l'intérieur du triangle curviligne défini par les inégalités $0 \leq x_i \leq 1$, $y_i \geq x_i$, $y_i \leq 2\ x_i$, $y_i \leq \sqrt{x_i}$, avec $x_i = \frac{T_i}{T_1}$, ce qui est tout à fait réaliste loin du point critique.

On va rechercher le a optimal au sens des moindres carrés, c'est-à-dire qu'à partir d'une série de n couples (x_i, y_i) donnés, vérifiant les inégalités ci-dessus, on recherche $\bar{a}$ réalisant:

$$f(\bar{a}) = \underset{a \in [1/2,1]}{\text{Min}} f(a), \text{ avec } f(a) = \sum_{i-1}^{n} (y_i - x_i^a)^2$$

Pour montrer qu'il existe un $\bar{a}$ optimal unique, il suffit de montrer que la fonction f est strictement convexe en 0 et 1. Pour cela, montrons que sa dérivée seconde est strictement positive, soit: $g(a) = (y - x^a)^2$, (x, y) étant l'un des couples (x_i, y_i).

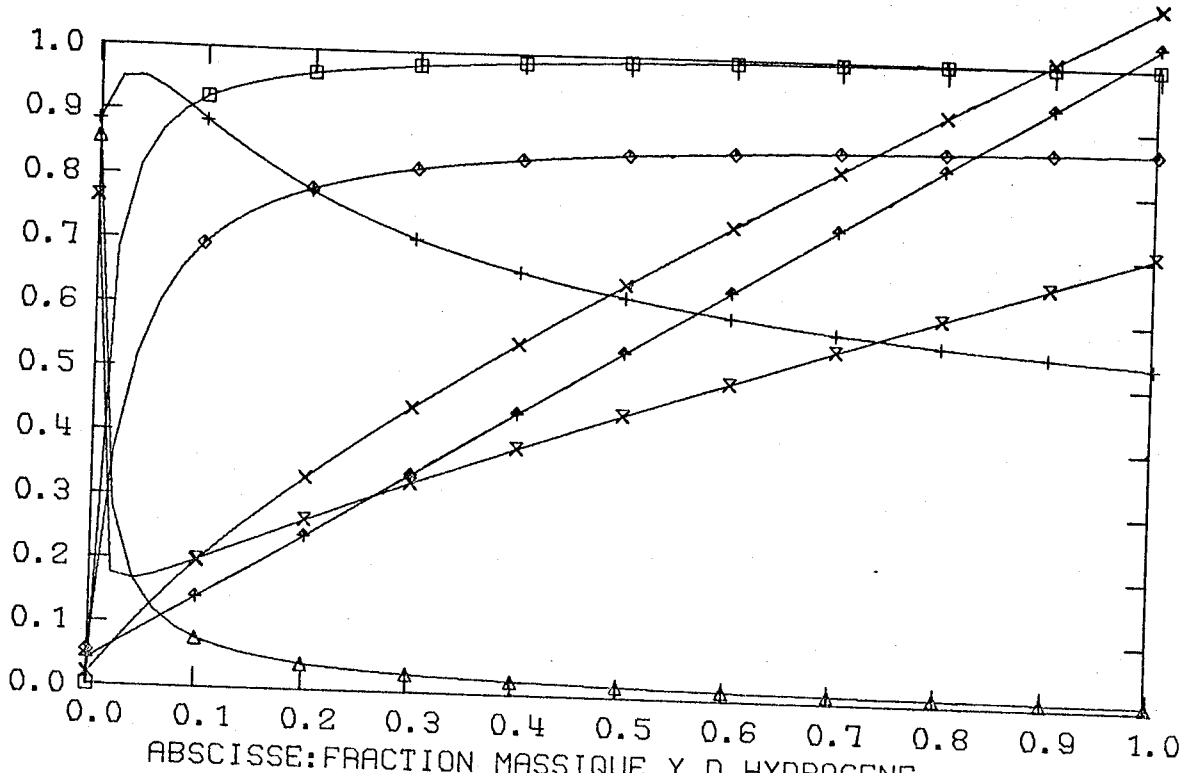
$$g'(a) = -2 \text{ Log } x\ (y - x^a)\ x^a$$

$$g''(a) = 2\ (\text{Log } x)^2\ x^{2a} - 2 \text{ Log } (x)^2\ (y - x^a)\ x^a$$

$$g''(a) = 2\ x^a\ (\text{Log } x)^2\ (2\ x^a - y)$$

Avec l'hypothèse que nous avons faite, $2\ x^a - y$ est toujours positif. Donc g" et f" sont positives et par conséquent f est strictement convexe.

Donc il existe un $\bar{a}$ optimal unique. Pour l'argon, nous avons trouvé $\bar{a} = 0.822$, ce qui est très satisfaisant (figure 5).



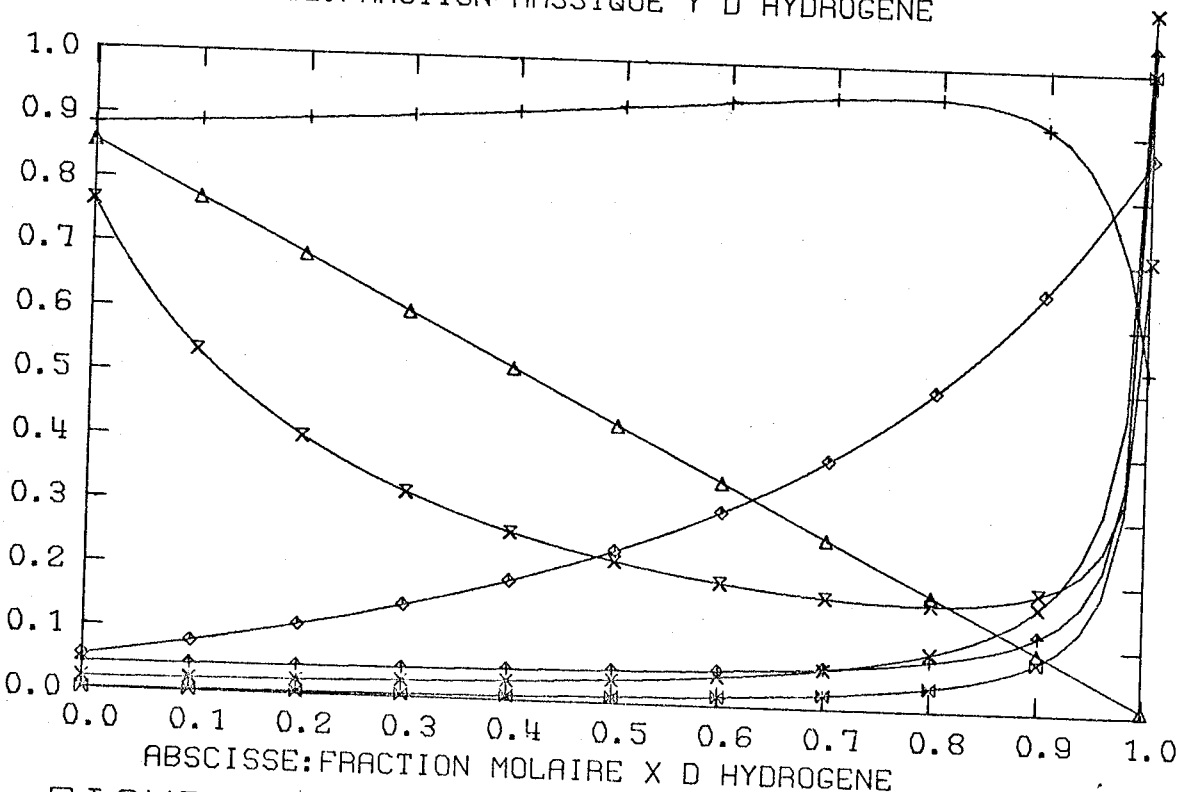


FIGURE 10 PROPRIETES PHYSIQUES DU MELANGE H2-MOF6 (P=1BAR T=300K)

□ X ⋈ Y △ ρ gcm^{-3}*100 + μ $gcm^{-1}s^{-1}$*6000 × ν cm^2s^{-1}
◇ λ $calg^{-1}cm^{-1}s^{-1}K^{-1}$*3000 ⍋ c_P $calg^{-1}K^{-1}$*0.3 ⋇ PR

FIGURE 11

CAS N° 1

T = 1350 K. P = 1 bar. R = 30. D = 0,72 1/s. Sc 0,391

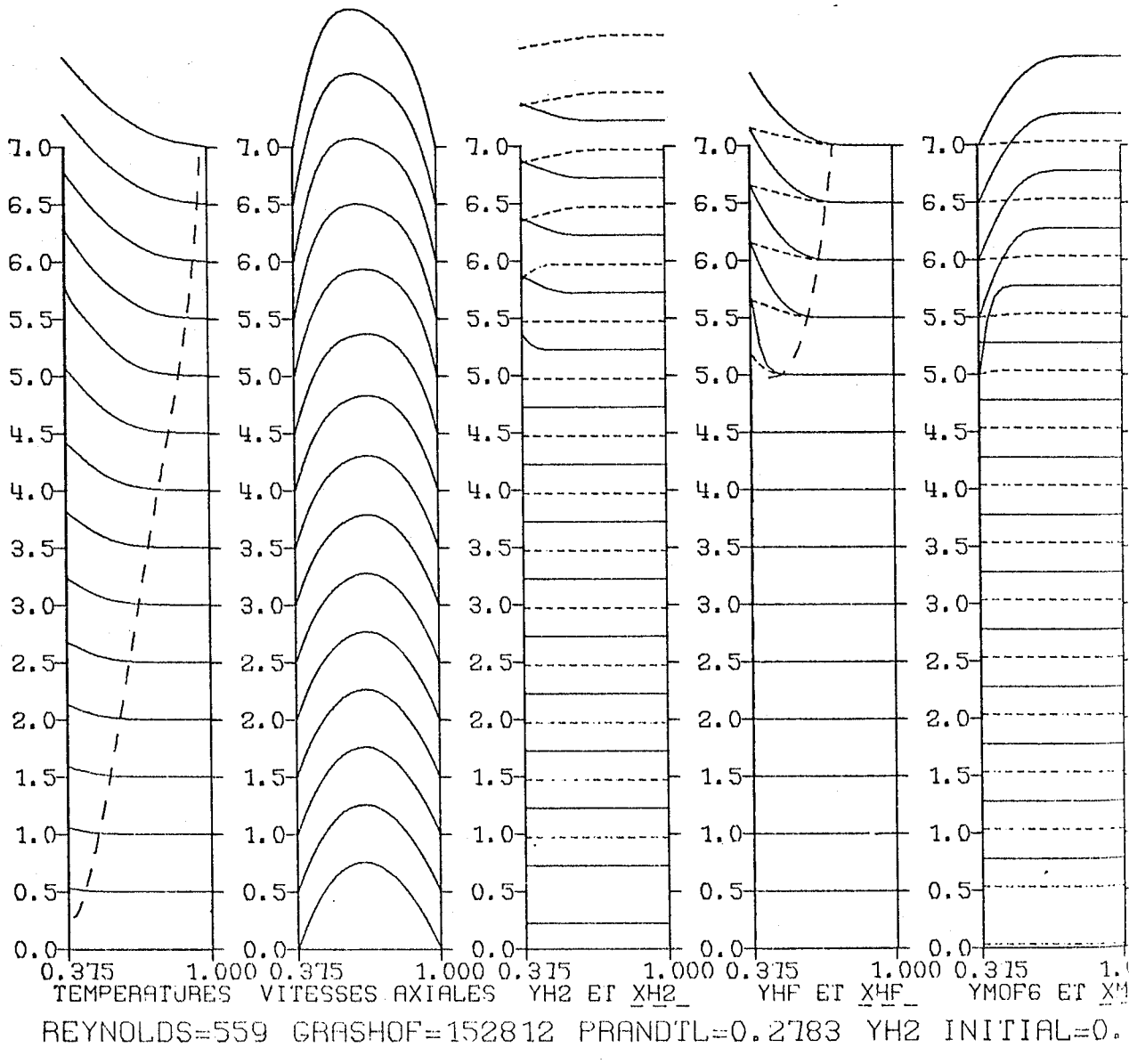


FIGURE 12

CAS N° 2

T = 1050 K. P = 1 bar. R = 30. D = 0,72 1/s. Sc = 0,391

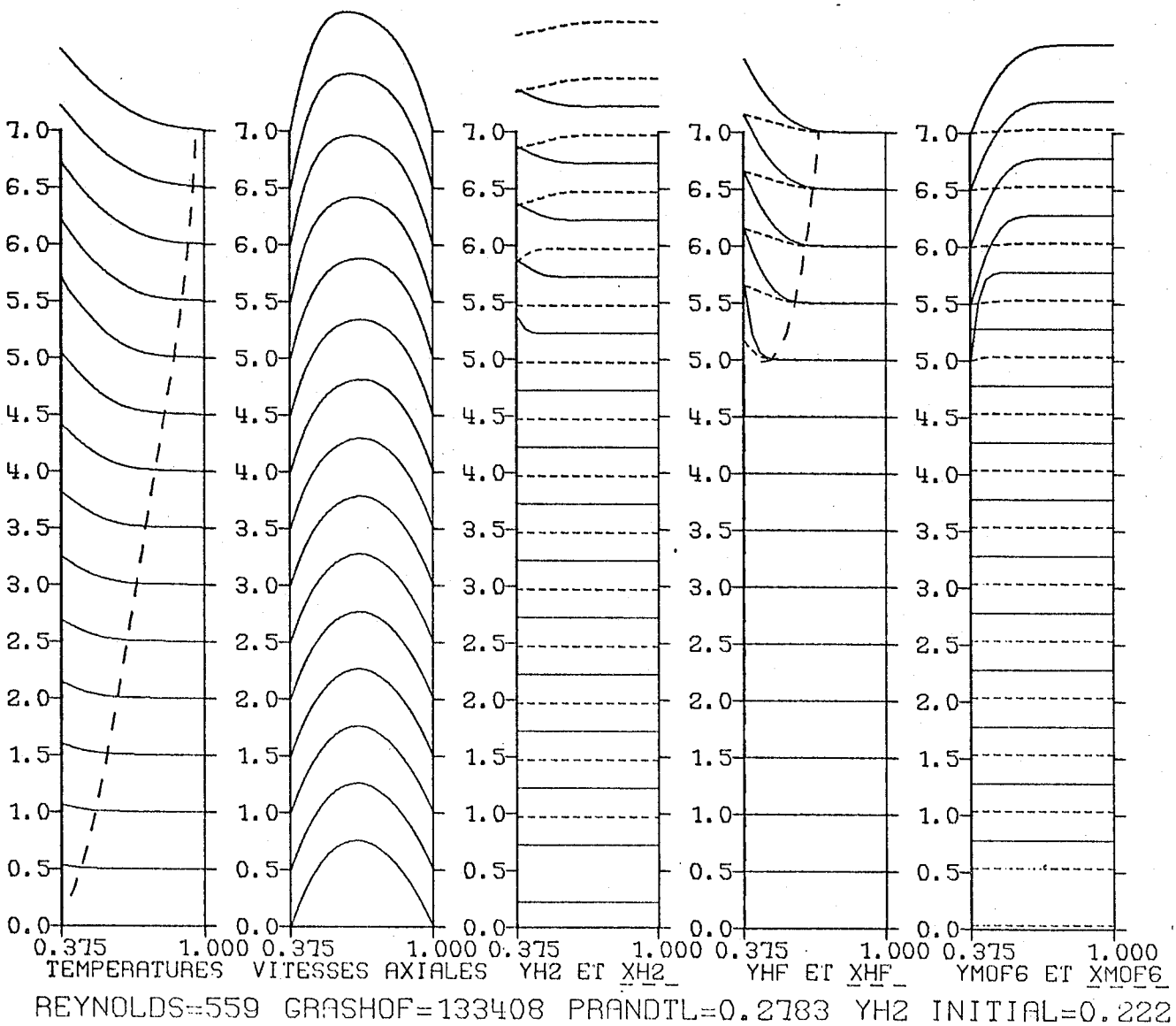


FIGURE 13

CAS N° 3

T = 1650 K. P = 1 bar. R = 30. D = 0,72 1/s. Sc = 0,391

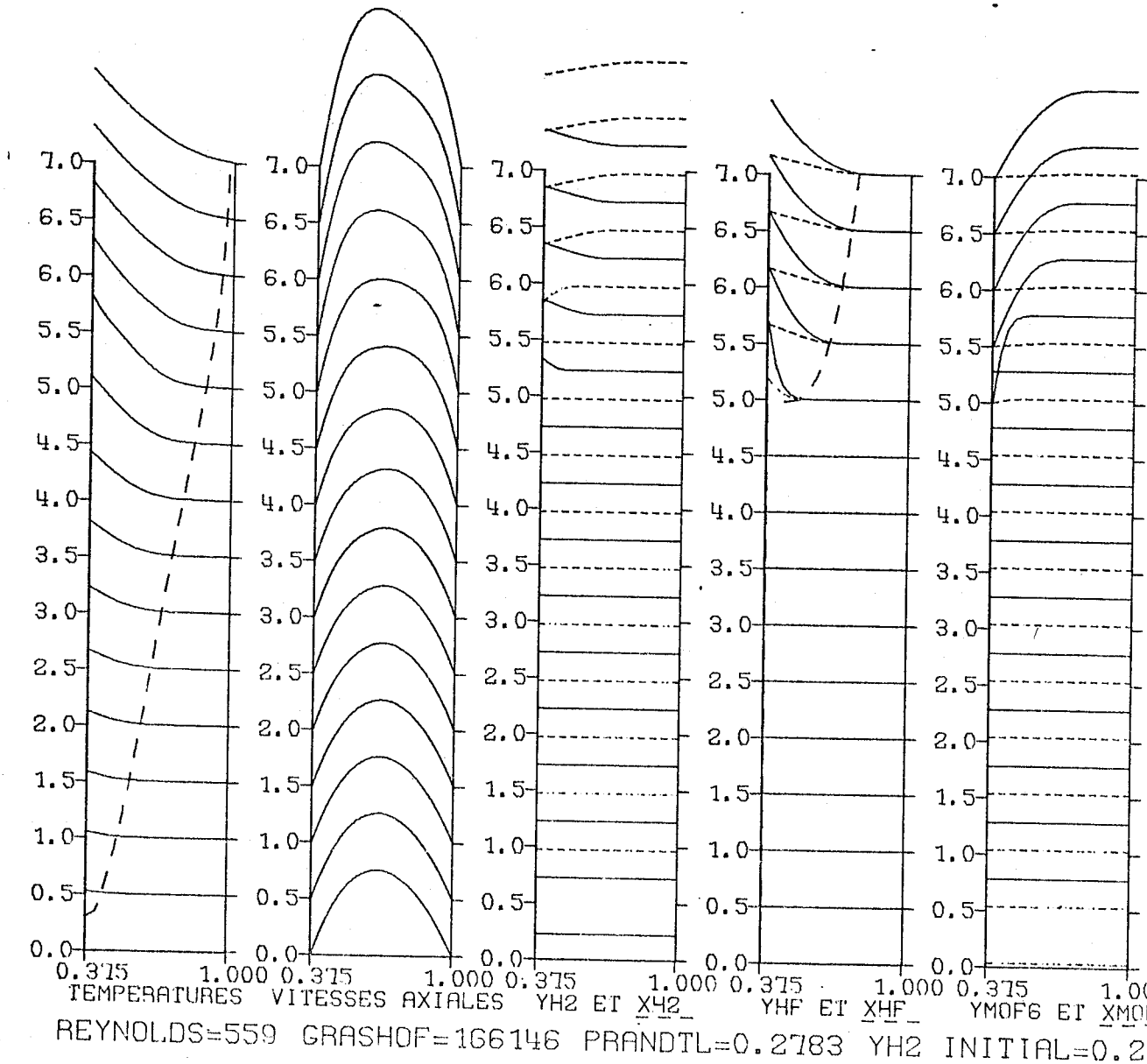


FIGURE 14

CAS N° 4

T = 1050 K. P = 0,1 bar. R = 30. D = 0,72 l/s. Sc = 0,391

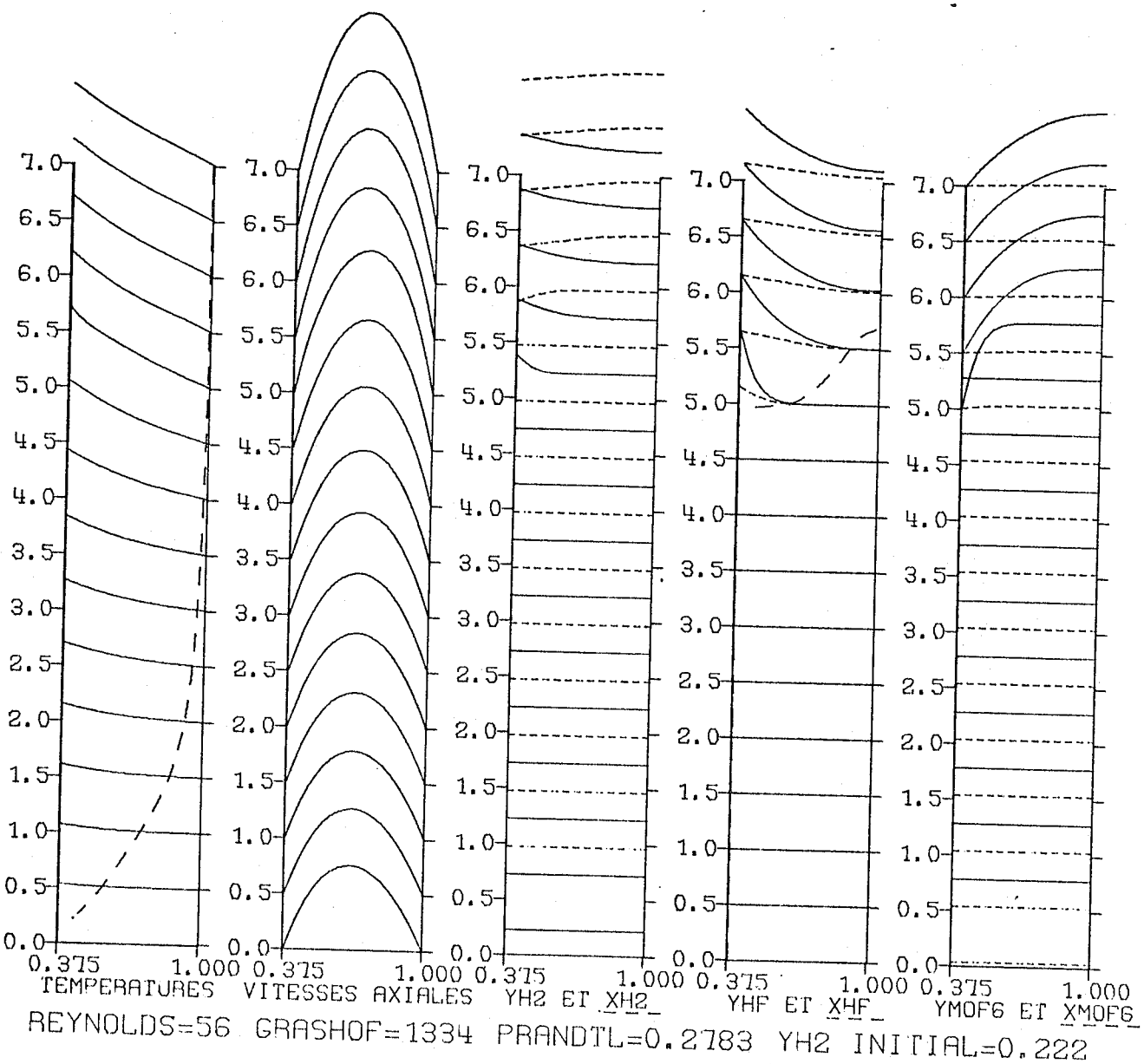


FIGURE 15

CAS N° 5

T = 1050 K. P =0,01 bar. R = 30. D = 0,72 1/s. Sc = 0,391

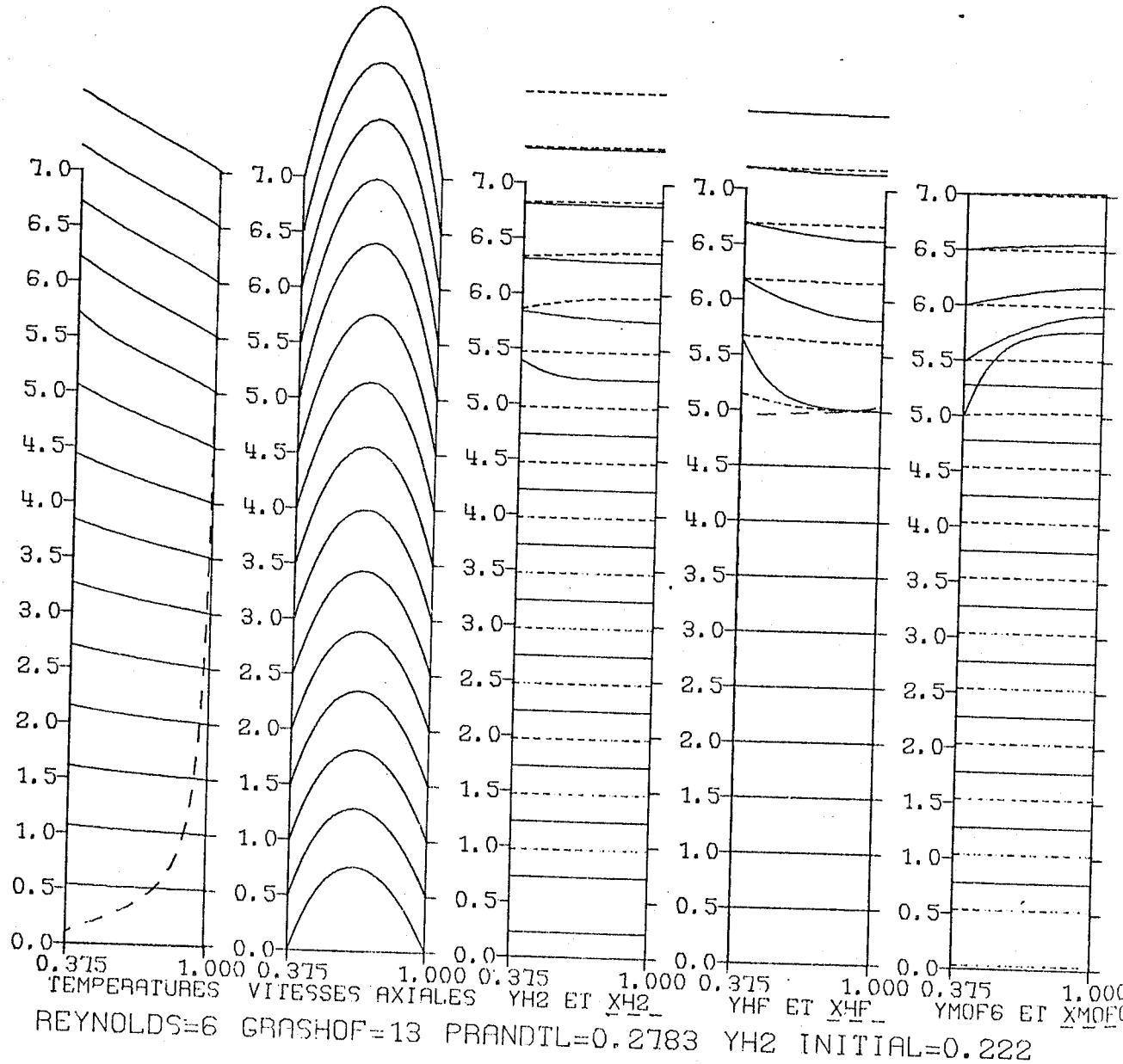


FIGURE 16

CAS N° 6

T = 1350 K. P = 1 bar. R = 99. D = 2,32 1/s. Sc = 0,705

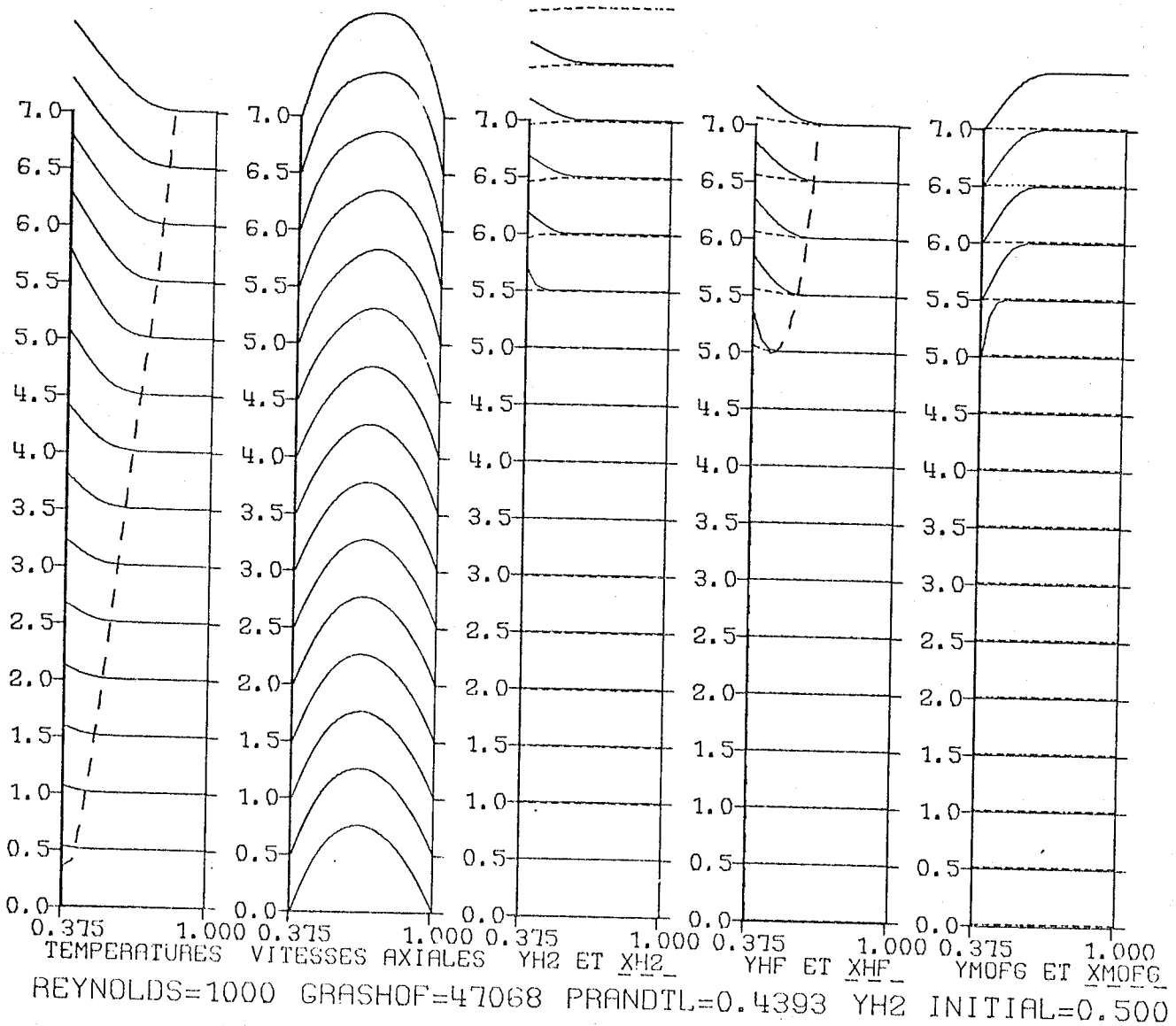


FIGURE 17

CAS N° 7

T = 1350 K. P = 1 bar. R = 9. D = 0,232 l/s. Sc = 0,179

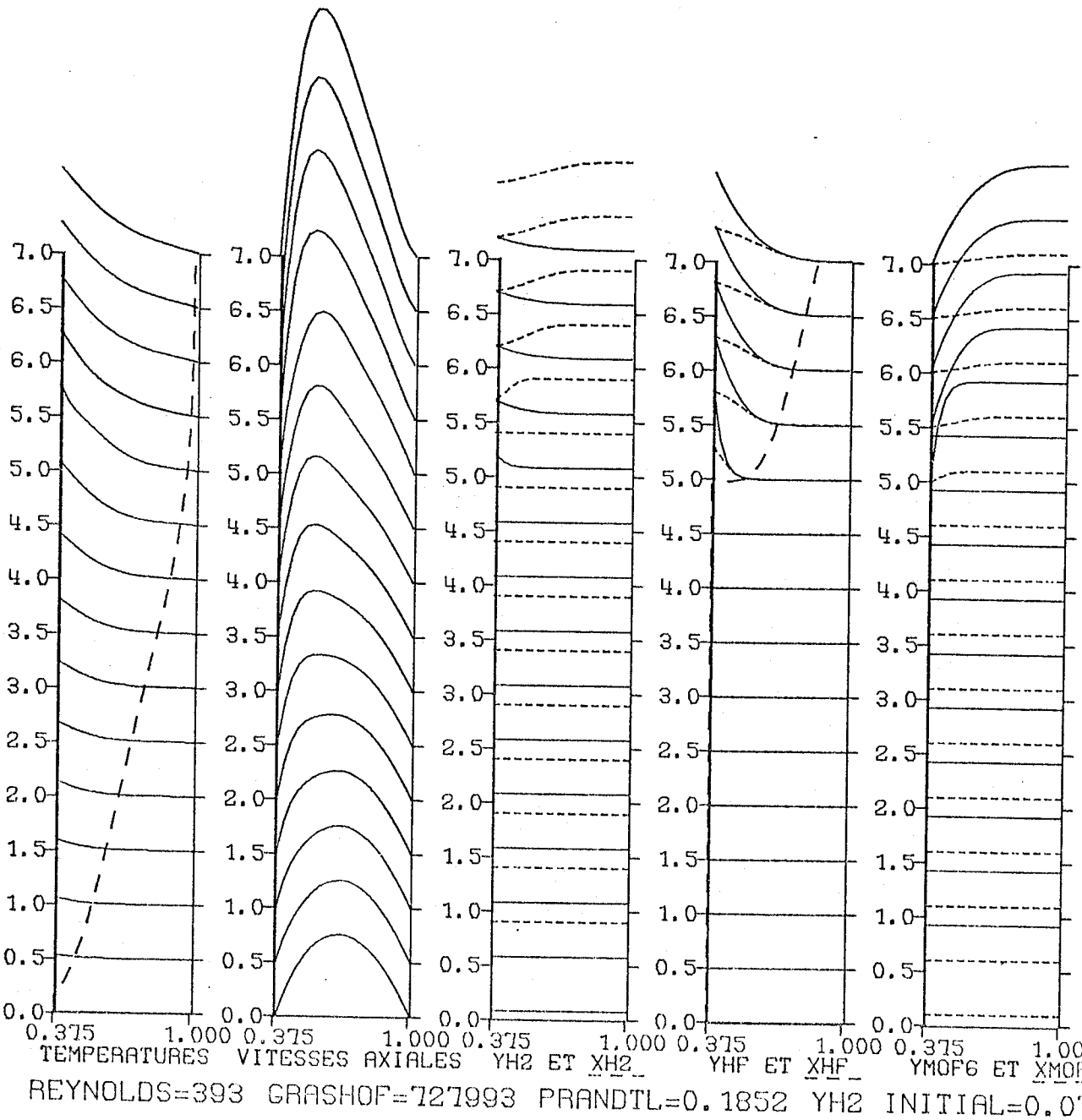


FIGURE 18

CAS N° 8

T = 1350 K. P = 1 bar. R = 7. D = 0,186 1/s. Sc = 0,146

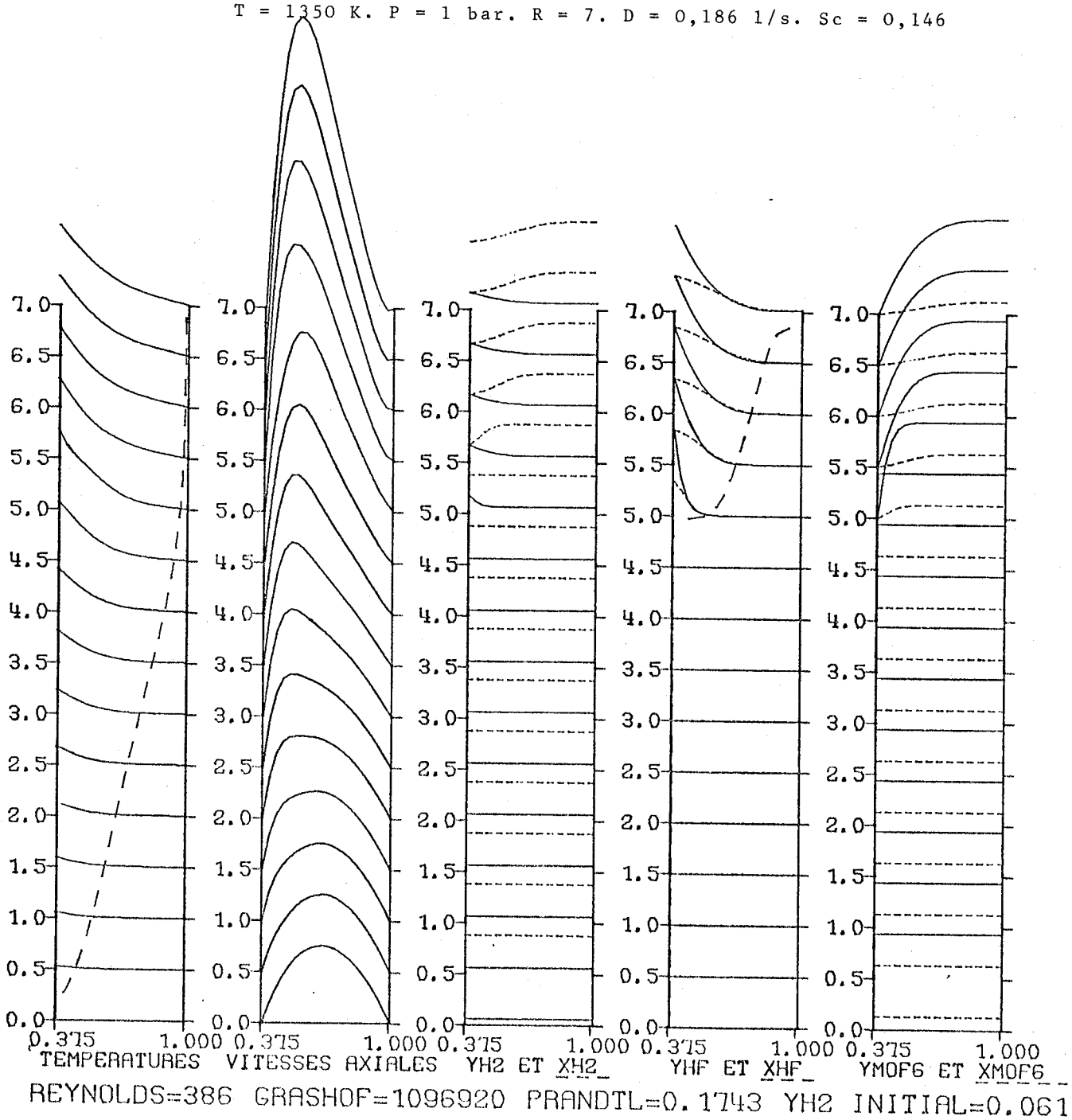


FIGURE 19

CAS N° 9

T = 1350 K. P = 1 bar. R = 30. D = 0,36 1/s. Sc = 0,391

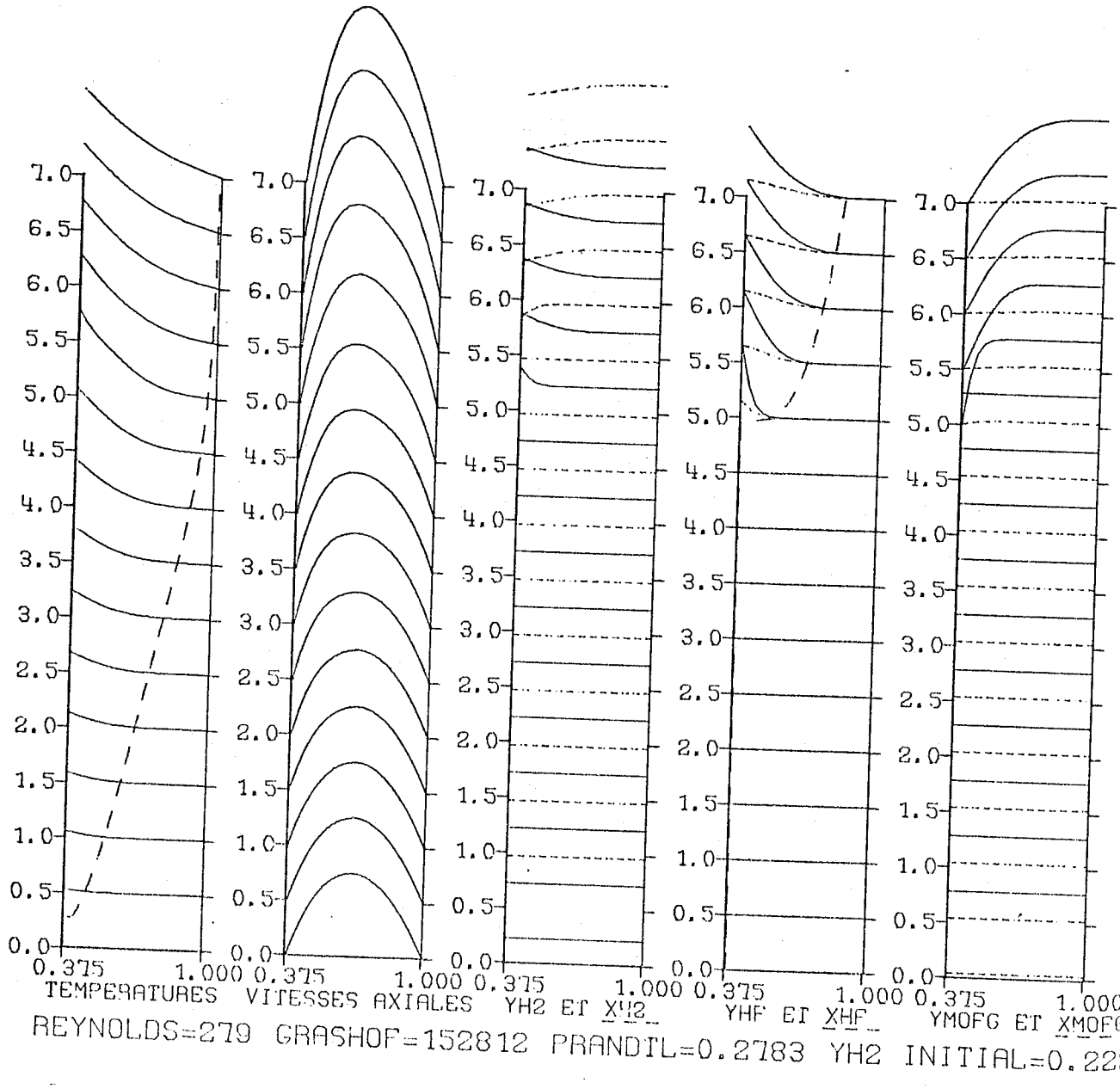
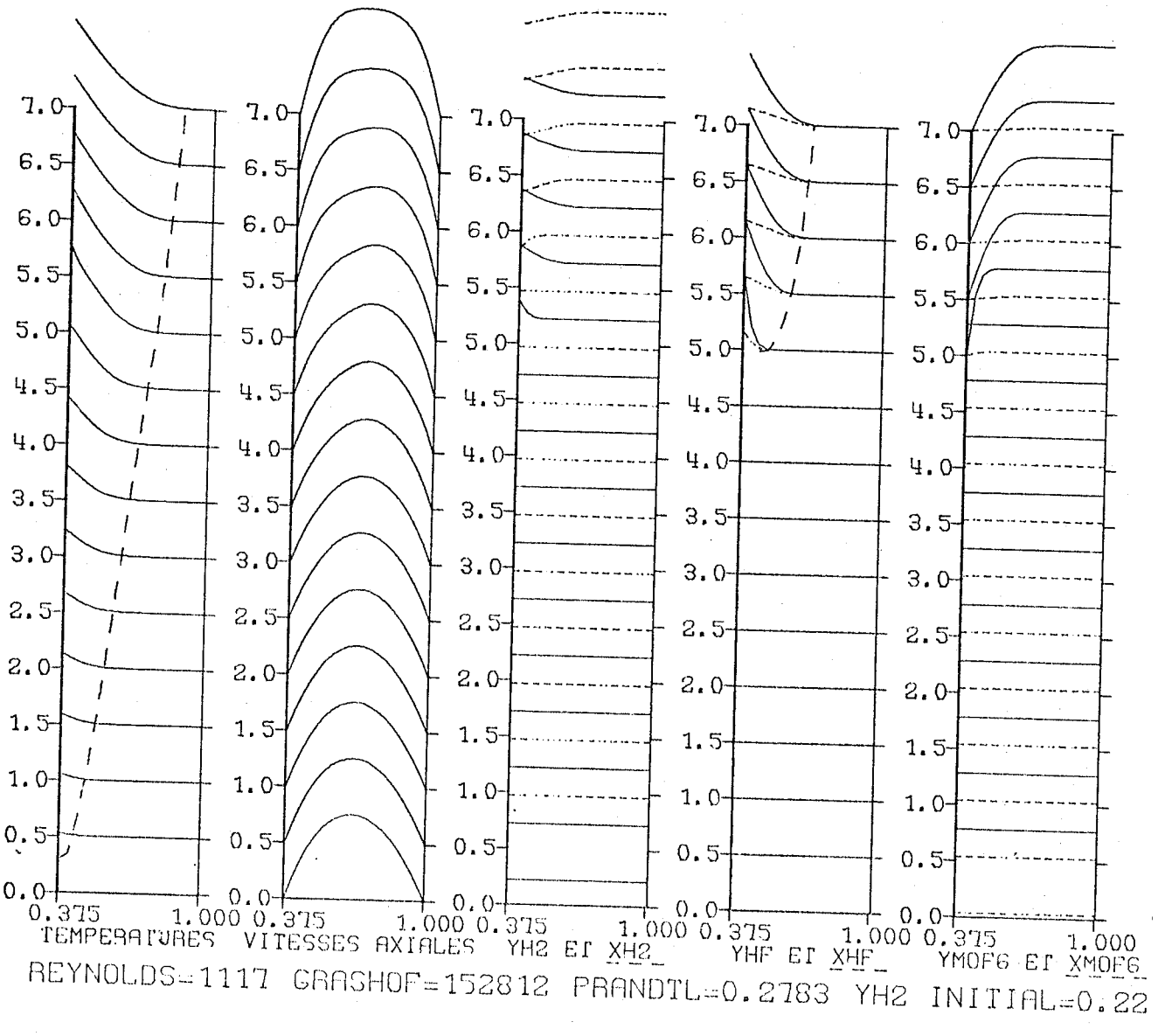
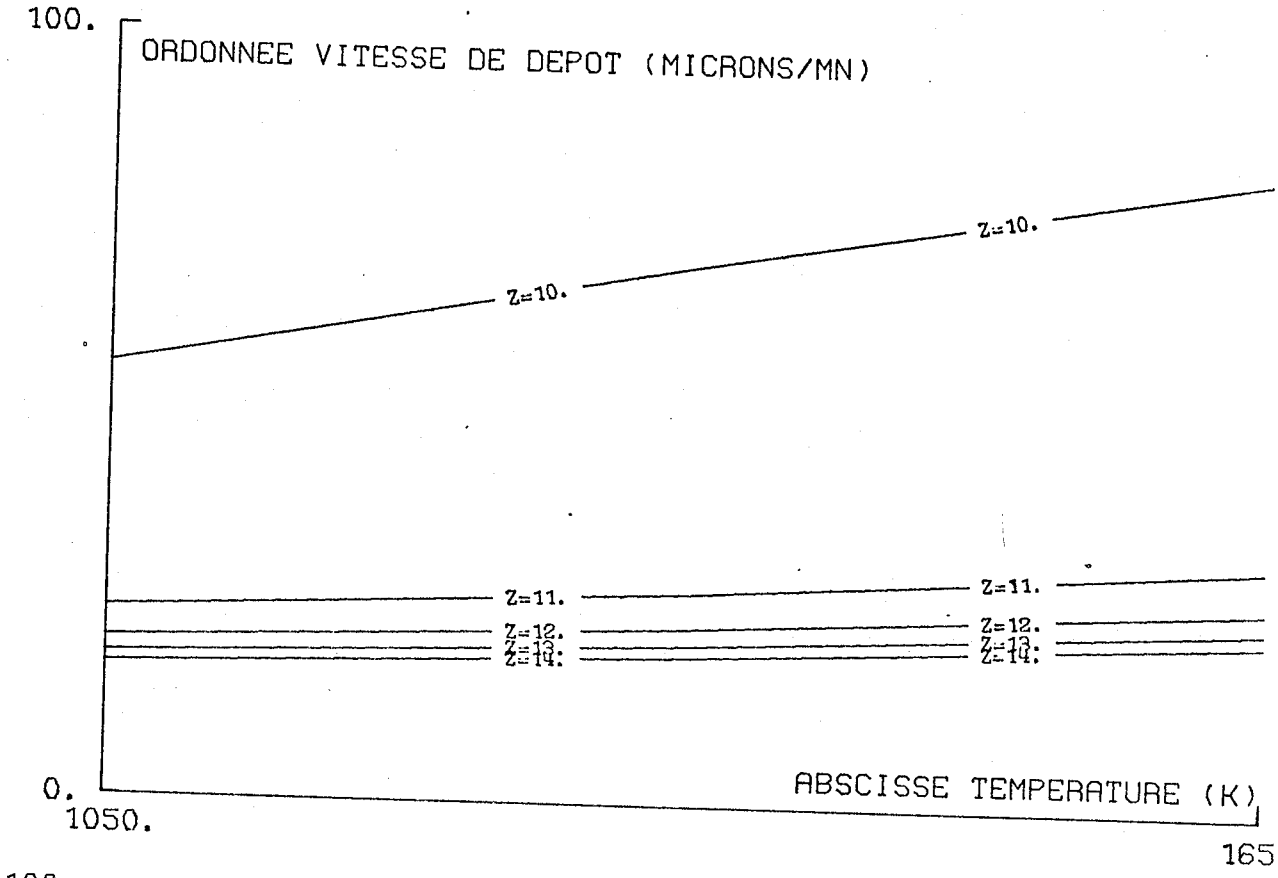


FIGURE 20

CAS N° 10

T = 1350 K. P = 1 bar. R =30. D = 1,44 1/s. Sc = 0,391





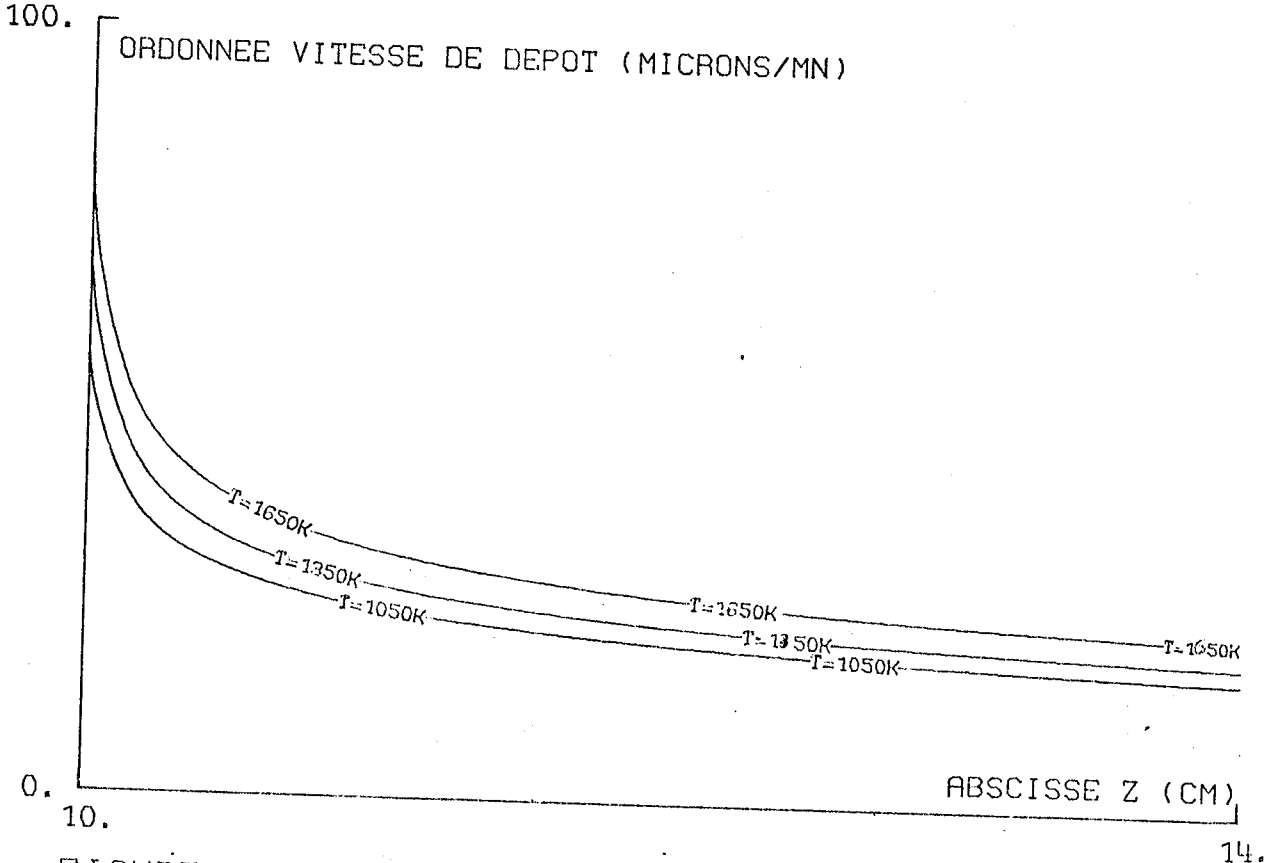
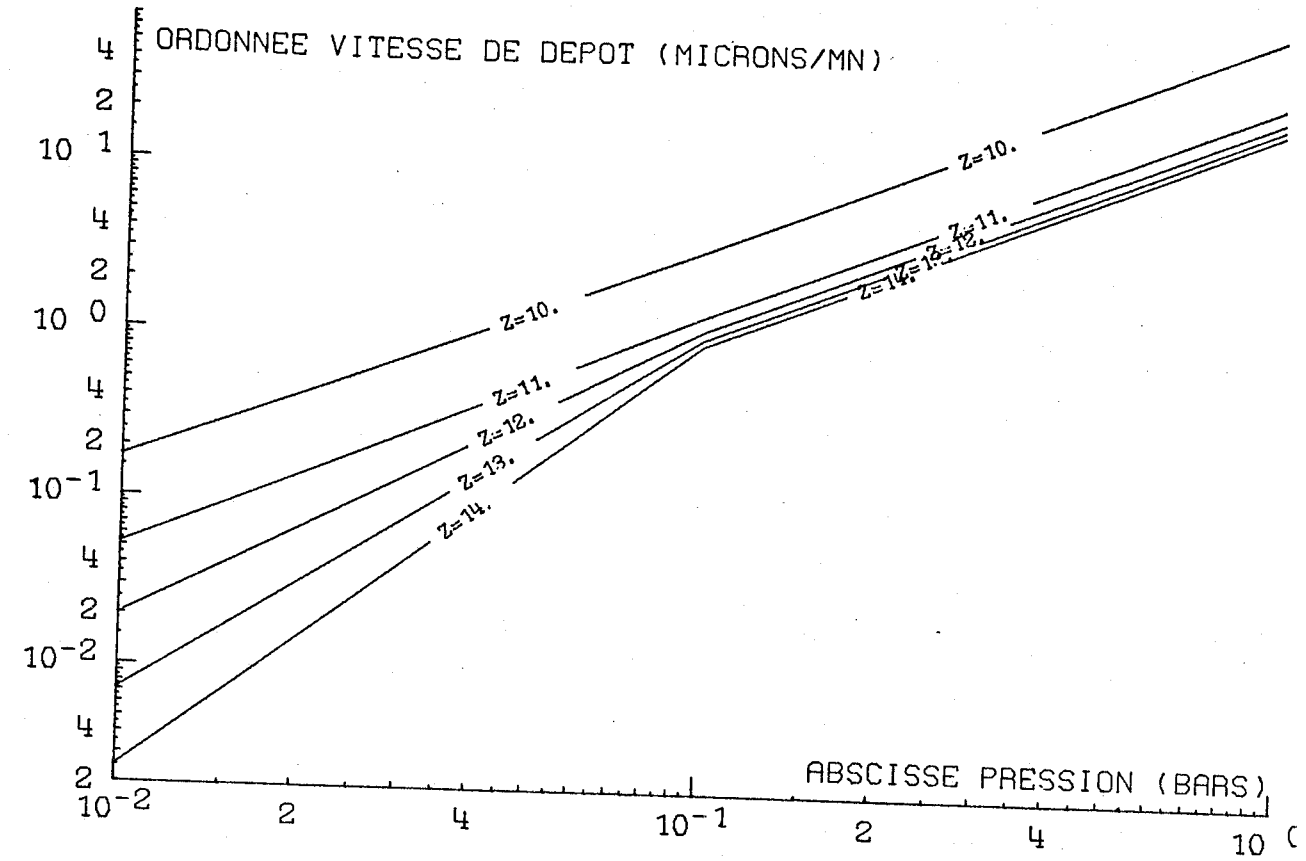


FIGURE 21 INFLUENCE DE LA TEMPERATURE SUR LE DEPOT



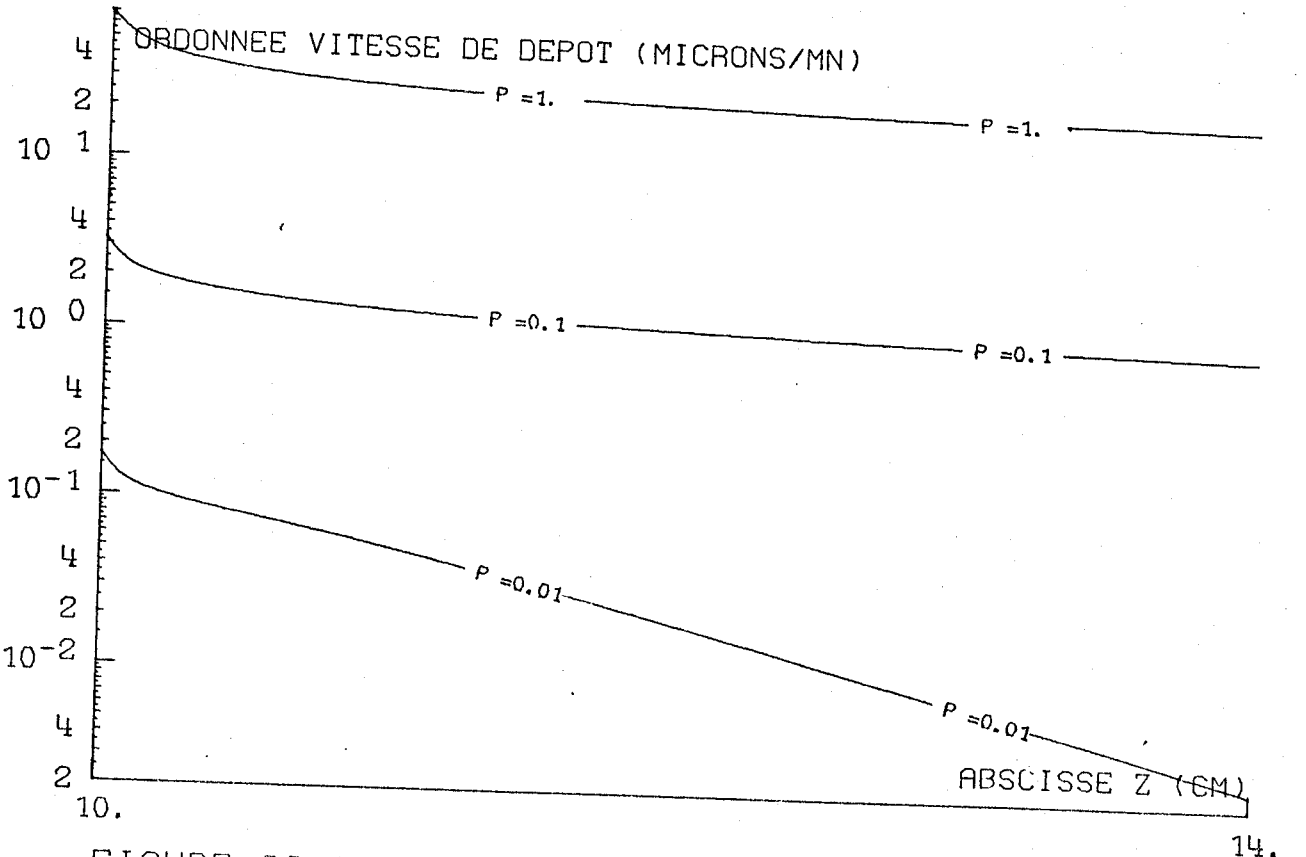


FIGURE 22 INFLUENCE DE LA PRESSION SUR LE DEPOT

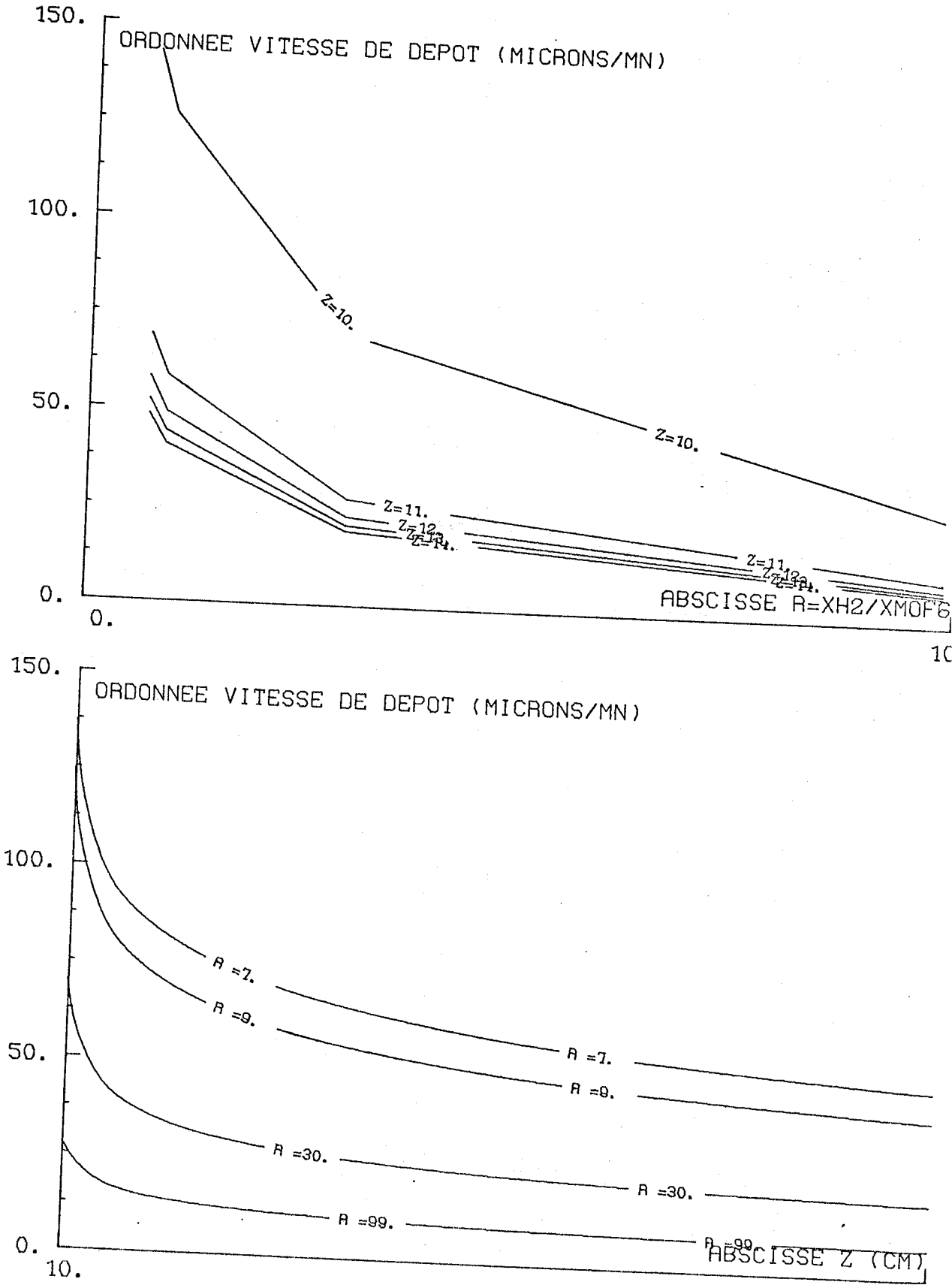
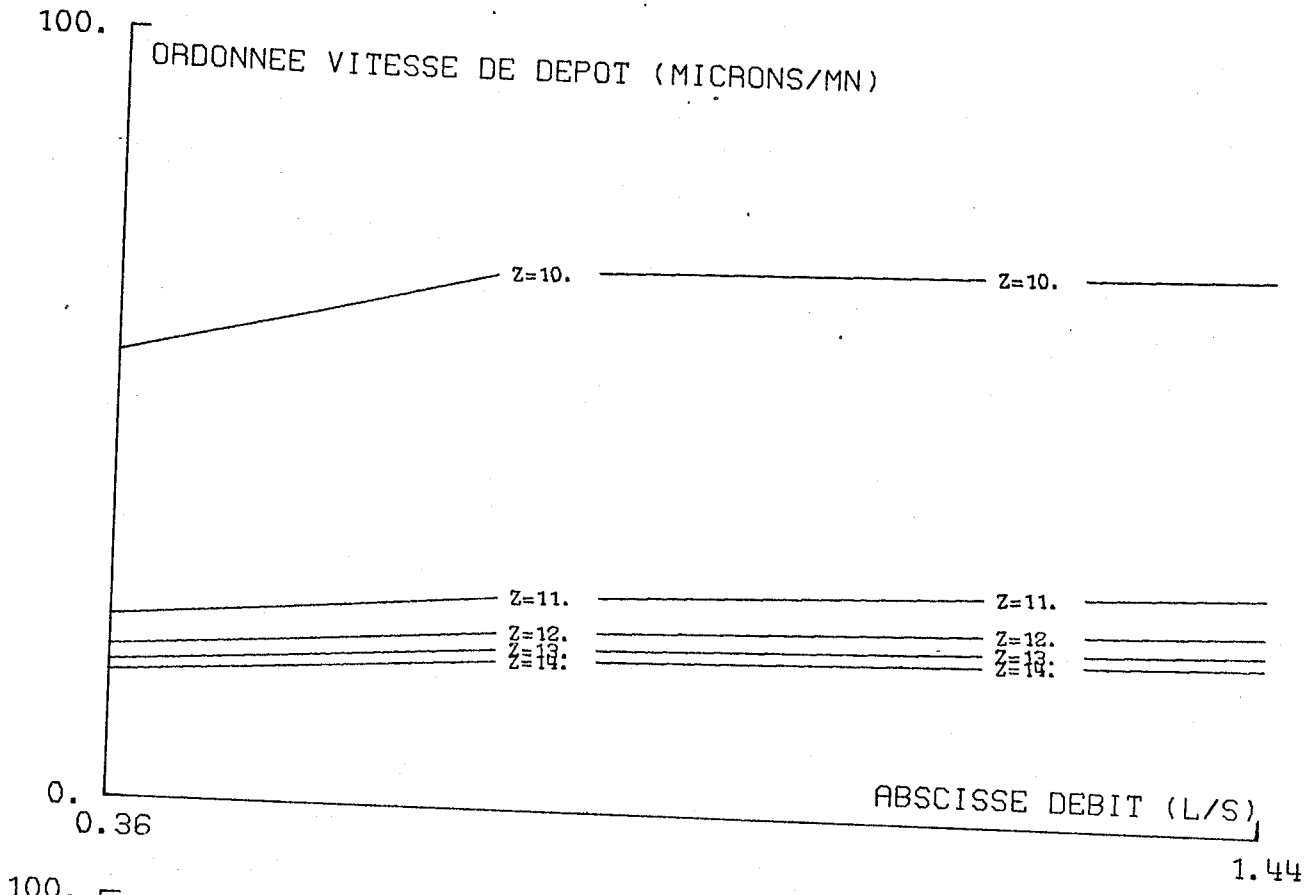


FIGURE 23 INFLUENCE DE LA DILUTION SUR LE DEPOT



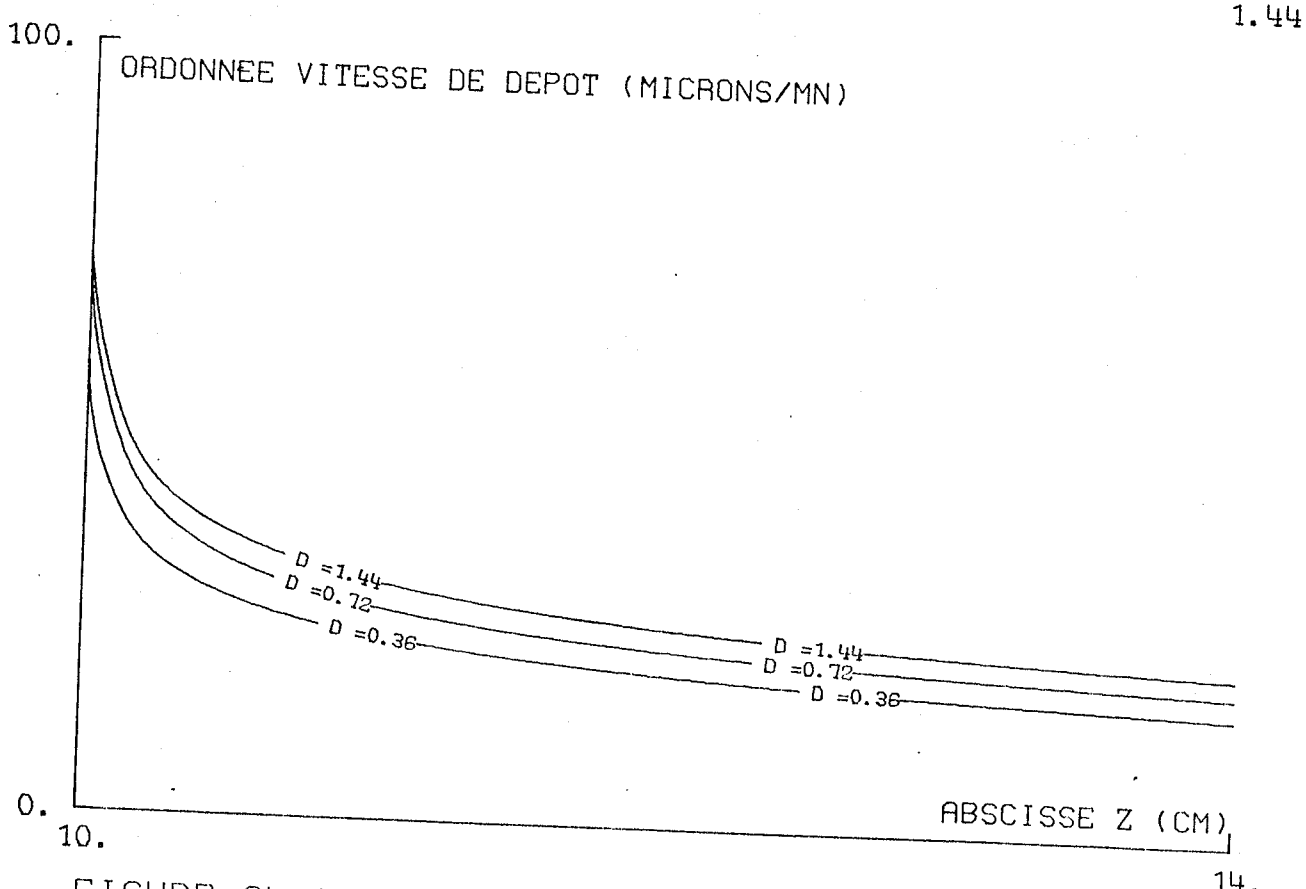


FIGURE 24 INFLUENCE DU DEBIT SUR LE DEPOT

Dernière page d'une thèse

VU

Grenoble, le 5 Nov 1973

Le Président de la thèse

Vu, et permis d'imprimer,

Grenoble, le 5 Novembre 1973

Le Président de l'Université
Scientifique et Médicale